

**Grundzustandseigenschaften und
magnetfeldinduzierte Phasen
in korrelierten Elektronensystemen**

Von der Fakultät für Elektrotechnik, Informationstechnik, Physik
der Technischen Universität Carolo-Wilhelmina zu Braunschweig

zur Erlangung des Grades eines Doktors

der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)

genehmigte Dissertation

von Nico Steinki

aus Helmstedt

eingereicht am: 20.02.2019

Disputation am: 14.05.2019

1. Referent: apl. Prof. Dr. Stefan Süllo

2. Referent: PD. Dr. Hans Werner Schumacher

Druckjahr: 2019

Zusammenfassung

Wir haben den elektrischen Transport und die thermodynamischen Eigenschaften von vier unterschiedlichen korrelierten Elektronensystemen untersucht.

Bisherige Untersuchungen beschäftigten sich mit den elektronischen und magnetischen Grundzustandseigenschaften des tetraboriden Materials MnB_4 . In diesen Untersuchungen konnte der Grundzustand noch nicht eindeutig beschrieben werden. Wir präsentieren hier die experimentellen Untersuchungen in Form des spezifischen Widerstandes und der Magnetisierung an einkristallinem MnB_4 . Mit unseren Daten konnten wir bestimmen, dass der elektronische Grundzustand von MnB_4 intrinsisch einem Pseudo-Gap-System entspricht, was vorangegangene Bandstrukturechnungen bestätigt. Darüber hinaus konnten wir zeigen, dass das System weder magnetische Ordnung aufweist, noch ein Verhalten nahe eines magnetisch geordneten Zustandes, wodurch bisherige Annahmen diesbezüglich widerlegt werden konnten.

Weiter präsentieren wir die Untersuchung des Magnetowiderstandes von MnSi -Dünnschichten in hohen Magnetfeldern bis 24 T. Wir konnten zeigen, dass der Magnetowiderstand im Kontext von Spinfluktuationstheorie betrachtet werden kann, was uns erlaubt, die Ergebnisse mit Untersuchungen an MnSi -Bulk-Material zu vergleichen. Trotz qualitativen Ähnlichkeiten zwischen Bulk- und Dünnschichtdaten, konnten klare quantitative Unterschiede herausgearbeitet werden. Wir nehmen an, dass diese Auffälligkeiten die Unterschiede in den jeweiligen Spinfluktuationsspektren von MnSi -Bulk und -Dünnschicht reflektieren.

Weiterhin haben wir den Hall-Effekt, Magnetotransport, und die Magnetostriktion von einkristallinem UPt_2Si_2 in Magnetfeldern bis 60 T bei Temperaturen bis zu 50 mK gemessen. Damit konnte das Phasendiagramm für Magnetfelder $B \parallel a$ - und c -Achse bestätigt werden. Darüber hinaus konnten wir eine starke Änderung des Hall-Effektes an den Phasengrenzen für $B \parallel c$ -Achse beobachten. Aus einem Vergleich mit Bandstrukturechnungen, die einen dualen Charakter für zwei der $5f$ -Elektronen annehmen, schlagen wir vor, dass diese feldinduzierten topologischen Änderungen der Fermi-Oberfläche einem Lifshitz-Übergang zugeschrieben werden. Außerdem konnten wir eine einzigartige Hysterese im Magnetotransport und der Magnetostriktion beobachten, was darauf hindeutet, dass der Lifshitz-artige Übergang von diskontinuierlicher Natur ist, was für wechselwirkende Elektronensysteme vorhergesagt wird. Zum Schluss haben wir die Magnetisierung und die Magnetostriktion von einkristallinem $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$ in Magnetfeldern bis 65 T entlang der drei Kristallachsen a , b und c gemessen. Hierbei konnten wir unterschiedliche Phasenübergangsverhalten in die antiferromagnetische Phase von $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$ entlang der a - und b -Achse beobachten. Diese bestätigen die komplexe Natur des Phasenübergangs erster Ordnung in diesem System. Für $B \parallel c$ -Achse konnte bis zu Feldern von 65 T keine feldinduzierten Phasenübergänge beobachtet werden. Außerdem konnten wir eine große magnetische Anisotropie zwischen den drei Achsen beobachten. Der Anisotropiefaktor zwischen $B \parallel b$ und a ist 3, zwischen b und c ist der Faktor größer als 5. Zusammen mit einer weiterführenden Charakterisierung in unserem Labor durch die Messung des spezifischen Widerstandes und des Magnetowiderstandes bis 9 T konnten wir das magnetische Phasendiagramm für $B \parallel a$ - und b -Achse weiter ausbauen.

Abstract

We have studied the electronic transport and thermodynamic properties of four different correlated electron systems.

Recent studies have dealt with the electronic and magnetic ground state properties of the tetraboride material MnB_4 . So far, however, the ground state properties could not be established unambiguously. Therefore, here we present an experimental study on single-crystalline MnB_4 by means of resistivity and magnetization measurements. With our data we establish that the electronic ground state of MnB_4 is intrinsically that of a pseudo-gap system, in agreement with recent band structure calculations. Furthermore, we demonstrate that the material does neither show magnetic order nor a behavior arising from the vicinity to a magnetically ordered state, this way disproving previous claims.

Further, we present a study of the magnetoresistivity of thin film MnSi in high magnetic fields up to 24 T. We establish that the magnetoresistivity can be understood in terms of spin fluctuation theory, allowing us to compare our data to studies of bulk material. Despite of a close qualitative resemblance of bulk and thin film data, there are clear quantitative differences. We propose that these reflect a difference in the spin fluctuation spectra in thin film and bulk material MnSi .

We have measured the Hall effect, magnetotransport, and magnetostriction on the field-induced phases of single-crystalline UPt_2Si_2 in magnetic fields up to 60 T at temperatures down to 50 mK, firmly establishing the phase diagram for magnetic fields $B \parallel a$ - and c axes. Moreover, for the $B \parallel c$ -axis we observe strong changes in the Hall effect at the phase boundaries. From a comparison to band structure calculations utilizing the concept of a dual nature of the uranium $5f$ -electrons, we propose that these represent field-induced topological changes of the Fermi surface due to at least one Lifshitz transition. Furthermore, we find a unique history dependence of the magnetotransport and magnetostriction data, indicating that the proposed Lifshitz-type transition is of a discontinuous nature, as predicted for interacting electron systems.

Finally, we measured the magnetization and magnetostriction of single crystalline $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$ in magnetic fields up to 65 T along the three crystallographic axes a , b and c . Here we could estimate different types of phase transition behavior into the antiferromagnetic state of $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$ along the a and b axes, which emphasize the complex nature of the first order phase transition. Up to 65 T we could not see any field induced phase transition along for $B \parallel c$ axes. Moreover we could point out a large magnetic anisotropy between the three axes. The anisotropy factor between $B \parallel b$ and a is 3, between b and c the factor is larger than 5. Together with a follow-up characterization in our laboratory by means of resistivity and magnetoresistivity measurements up to 9 T, we established the magnetic phase diagram for $B \parallel a$ and b axes.

Vorabveröffentlichungen der Dissertation

Teilergebnisse aus dieser Arbeit wurden mit Genehmigung der Fakultät für Elektrotechnik, Informationstechnik, Physik vertreten durch den Betreuer der Arbeit, in folgenden Beiträgen veröffentlicht:

Publikationen:

- N. Steinki, J.L. Winter, D. Schulze Grachtrup, D. Menzel, S. Süllo, A. Knappschneider, und B. Albert: *Electronic and magnetic ground state of MnB_4* , J. Alloys Compd. **695**, 2149 (2017)
- D. Schulze Grachtrup, N. Steinki, S. Süllo, Z. Çakir, G. Zwicknagl, Y. Krupko, I. Sheikin, M. Jaime und J. A. Mydosh: *Magnetic phase diagram and electronic structure of UPt_2Si_2 at high magnetic fields: A possible field-induced Lifshitz transition*, Phys. Rev. B **95**, 134422 (2017)
- D. Rauch, N. Steinki, W. Knafo, C. Pfeleiderer, W. J. Duncan, F. M. Grosche, und S. Süllo: *High magnetic field behavior of $NbFe_2$* , Physica B **536**, 510 (2018)
- N. Steinki, D. Schroeter, N. Wächter, D. Menzel, H. W. Schumacher, I. Sheikin, und S. Süllo: *Electronic transport in high magnetic fields of thin film $MnSi$* , arXiv:1806.07710 (2018)

Tagungsbeiträge:

- Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft 2015 in Berlin, Deutschland: *Electronic transport in MnB_4* (Poster)
- Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft 2016 in Regensburg, Deutschland: *Characterization of nanostructured $MnSi$ thin films* (Vortrag)

- Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft 2017 in Dresden, Deutschland: *Field induced Lifshitz transition in UPt_2Si_2 : Fermi surface under extreme conditions* (Vortrag)
- Strongly Correlated Electron Systems (SCES) 2017 in Prag, Tschechische Republik: *Field induced Lifshitz transition in UPt_2Si_2 : Fermi surface under extreme conditions* (Vortrag) und *High magnetic field behavior of $NbFe_2$* (Poster)
- Quantum Criticality and Novel Phases (QCNP) 2017 in Berlin, Deutschland: *Field induced Lifshitz transition in UPt_2Si_2 : Fermi surface under extreme conditions* (Poster)
- Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft 2018 in Berlin: *High magnetic field studies on $U_2Rh_3Si_5$* (Vortrag)

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	12
2. Grundlagen	18
2.1. Theoretische Grundlagen	18
2.1.1. Einleitung: Der Elektrische Transport	18
2.1.2. Leitfähigkeit und Boltzmann-Gleichung	20
2.1.3. Temperaturabhängiger Widerstand	25
2.1.4. Spinfluktuationen	27
2.1.5. Kondo-Effekt	34
2.1.6. Hall-Effekt und Magnetowiderstand	36
2.2. Experimentelle Grundlagen	41
2.2.1. Infrastruktur zur Messung des elektrischen Trans- portes	42
3. MnB₄	52
3.1. Einführung	52
3.2. Experimentelle Umsetzung	58
3.3. Ergebnisse und Diskussion	59
3.4. Zusammenfassung	65
4. MnSi	66
4.1. Einführung	66
4.2. Experimentelle Umsetzung	69
4.3. Ergebnisse und Diskussion	70
4.4. Zusammenfassung	83
5. UPt₂Si₂	86
5.1. Einführung	86

5.2. Experimentelle Umsetzung	91
5.3. Ergebnisse und Diskussion	92
5.4. Bandstrukturechnungen	102
5.5. Zusammenfassung	107
6. $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$	110
6.1. Einführung	110
6.2. Experimentelle Umsetzung	116
6.3. Ergebnisse und Diskussion	118
6.4. Zusammenfassung	140
A. Signalqualität und Auflösungsgrenze des Laborsetups	142
B. Phasenübergang-Hochfeld-Analyse am Beispiel NbFe_2	152
Abbildungsverzeichnis	158
Literaturverzeichnis	164

1. Einleitung

Seit der Mensch sich mit Grundlagenforschung auseinandersetzt, um so die Mechanismen der Natur zu ergründen, war es stets das Bestreben das gesammelte Wissen auch in Anwendung zu bringen und so einen Nutzen für die Gesellschaft zu erzielen. Für viele Personen außerhalb der Wissenschaft wird erst auf den zweiten Blick klar, warum die Grundlagenforschung im Bereich der Festkörperphysik in heutiger Zeit einen gesellschaftlichen Mehrwert mit sich bringt. Allerdings lässt sich anhand einfacher Beispiele zeigen, dass die heutige Forschung an kondensierter Materie und vor allem ihre elektrischen, magnetischen und thermodynamischen Eigenschaften Einzug in jeden Winkel des Alltags gefunden haben. Erwähnt sei an dieser Stelle die Entdeckung des winkelabhängigen anisotropen Magnetowiderstands-Effektes und die Umsetzung als Winkelsensoren in allen Bereichen der Technik, der Untersuchung des Hall-Effektes in unterschiedlichen Materialien und dessen Nutzung sehr präzise Magnetfelder zu vermessen oder die Möglichkeit magnetische Effekte als Grundlage für immer kleinere und schnellere Datenspeicherung zu nutzen. Diese Liste lässt sich beliebig fortführen, soll aber in ihrer Knappheit verdeutlichen, dass im Grunde jeder Aspekt, den wir heutzutage als Innovation betrachten, in seiner frühen Entwicklung im Rahmen der naturwissenschaftlichen Grundlagenforschung thematisiert und erforscht werden musste. Ganz besonders ist hierbei die Verschmelzung unterschiedlicher Disziplinen zu neuen Teilgebieten der Forschung zu verstehen. In der Chemie werden fortwährend neue Rezepte für exotische Materialien entdeckt, entwickelt und angewendet, die zum Beispiel im Bereich der Physik charakterisiert werden oder im Bereich der Biologie zu einer Symbiose zwischen Technik und biologischen Systemen führen.

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit einem Teilgebiet der kondensierten Materie und kann als Sammelstudie für moderne Anforderungen zur Untersuchung unterschiedlichster Systeme und ihre elektrischen Transporteigenschaften gesehen werden. Im Bereich der korrelierten Elektronensysteme gibt es mit jeder neu entdeckten Materialklasse neue unverstandene Effekte, die durch unterschiedlichste Messmethoden und theoretische Betrachtungen erforscht werden wollen. Alle hier untersuchten Materialien wurden durch ähnliche Messmethodiken auf unterschiedliche Fragen hin untersucht. Doch bei allen Systemen stand der elektrische Transport und die Verknüpfung mit magnetischen und strukturellen Eigenschaften im Vordergrund. Aus diesem Grund wurde in den physikalischen Grundlagen moderne Betrachtungsweisen des elektrischen Transports und die Auswirkung von extern angelegten Magnetfelder aufbereitet. Die Herleitung des Hall-Effektes und des Magnetowiderstandes aus der Boltzmann-Gleichung soll hierbei die enge Verknüpfung zwischen magnetischen und elektrischen Effekten verdeutlichen. Außerdem wird der Einfluss von magnetischen Spinfluktuationen in leitenden Systemen diskutiert und betrachtet, und welche Auswirkungen diese auf unterschiedliche magnetisch geordnete Phasen oder die scheinbar simple Temperaturabhängigkeit elektrischer Transportphänomene besitzen. Dafür wird in Anhang B eine Analysemethode des elektrischen Widerstandes in hohen Magnetfelder am Beispiel NbFe_2 vorgestellt, die im späteren Verlauf auf MnSi als Vertreter der d -Elektronen-Systeme und $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$ stellvertretend für die f -Elektronen-Systeme angewendet wurde. Da die elektrischen Transportmessungen einen großen Stellenwert in dieser Arbeit haben, wurde das verwendete Setup in den experimentellen Grundlagen beschrieben und in Anhang A durch die Vermessung einer Indium-Probe umfassend charakterisiert und auf seine Eigenschaften und Grenzen der experimentellen Auflösung hin untersucht. Ein besonderes Augenmerk liegt hierbei auf den Probengrößen. Denn zusätzlich zu den Standard-Messmethoden für konventionelle Bulk-Volumen-Proben, werden in den Grundlagen Mess- und Kontaktierungsmethoden vorgestellt, die es erlauben den elektrischen Transport im sub-Millimeter-Bereich bis in den für Nanostrukturen relevanten Bereich zu untersuchen.

In Kapitel 3 werden MnB_4 Kristalle auf die scheinbar einfache Frage hin untersucht, ob es sich bei dem System um ein halbleitendes oder

metallisches System handelt und welche Rolle der Magnetismus in diesem Material spielt. Besondere Herausforderung hierbei war die eingangs erwähnte Probengröße. Durch immer komplexere Syntheseverfahren ist es in der Festkörperchemie teilweise nicht möglich einen Einfluss auf die Größe der hergestellten Proben zu nehmen. Dadurch kann unter Umständen die Abmessung der entstandenen Kristalle sehr klein ausfallen. Im Fall von MnB_4 sprechen wir hierbei von gerade mal einigen 100 μm Länge für die untersuchten Kristalle. Dieses Material wurde synthetisiert, um der Frage nachzugehen, welche Rolle der elektrische und magnetische Grundzustand für die bei Boriden oft auftretende extreme strukturelle Härte spielt. Bei den erwähnten Größenordnungen scheitern allerdings konventionelle Kontaktierungs- und Messmethoden, vor allem bei Tieftemperaturmessungen. Aus diesem Grund musste ein erschwingliches und einfach zu handhabendes Setup entwickelt und charakterisiert werden, welches es ermöglicht, die MnB_4 -Kristalle in einer AC-Vier-Punkt-Konfiguration bei tiefen Temperaturen zu vermessen. Mit diesem Setup konnten wir herausarbeiten, dass es sich bei MnB_4 um ein halbleitendes Pseudogapsystem handelt. Mit dieser Aussage konnte die Grundlage für weiterführende theoretische Betrachtungen geschaffen werden, die es ggf. ermöglichen die extreme Härte und die elektrischen Eigenschaften von MnB_4 miteinander in Verbindung zu bringen.

In Kapitel 4 werden die Transporteigenschaften von MnSi -Dünnschichten in hohen externen Magnetfeldern betrachtet. Ausgangspunkt für diese Messungen war die Untersuchung von Sakakibara et al. [1] aus dem Jahr 1982 an MnSi -Bulk-Material in hohen Magnetfeldern und die Tatsache, dass der magnetoresistive Effekt bei MnSi -Dünnschichtproben in unserem Labor bei angelegten Magnetfeldern bis 8 T keine Anzeichen einer Sättigung zeigt. Die Untersuchung von Sakakibara et al. stand unter der Frage, welche Rolle Spinfluktuationen in MnSi spielen. Aus diesem Grund werden in diesem Kapitel magnetoresistive Messungen an Bulk-Material mit den Ergebnissen der Hochfelduntersuchungen an MnSi -Dünnschichtmaterial miteinander verglichen und auf die Frage hin untersucht, ob es durch dünnschichtspezifische Eigenschaften (Verspannungen und Druckeffekte durch das Substrat, Inselwachstum etc.) Auswirkungen auf die jeweiligen Spinfluktuationsspektren gibt. Unsere Messungen wurden für eine Vergleichbarkeit strikt nach dem Vorgehen von Sakakibara

et al. analysiert. Zusätzlich wurde hierbei auf die eingangs erwähnte Methode zur Analyse von Hochfeld-Widerstandsdaten zurückgegriffen. Die Analysen zeigen erste Hinweise, dass die verwendeten Spinfluktuationstheorien nicht vollständig das Verhalten von MnSi erklären. Es gibt Diskrepanzen zwischen Film- und Bulk-Material bezüglich der Spinfluktuationsparameter, die sich nicht ausschließlich durch Skalierungseffekte und einer Verschiebung der kritischen Temperatur erklären lassen.

In Kapitel 5 werden Hochfeldmessungen an UPt_2Si_2 und die Vervollständigung des magnetischen Phasendiagrammes betrachtet. UPt_2Si_2 zeigte in vorangegangenen Untersuchungen erste Hinweise auf einen Lifshitz-artigen Übergang, also einen Phasenübergang bei gleichzeitiger Änderung der Fermi-Oberflächentopologie. Aus diesem Grund wurde eine breite Studie von unterschiedlichen Messmethoden in hohen Magnetfeldern und tiefen Temperaturen von uns durchgeführt und analysiert. Die experimentellen Beobachtungen werden durch theoretische Untersuchungen komplementiert, denn durchgeführte Bandstrukturechnungen von Z. Çakir und G. Zwicknagl, die in diesem Kapitel ebenfalls kurz dargestellt werden, zeigen, dass in Feldern von ca. 30 T ein Lifshitz-artiger Übergang erwartet wird. Die Messungen der Magnetostriktion, des Magnetowiderstandes und des Hall-Effektes in hohen Magnetfeldern untermauern die theoretischen Vorhersagen und vervollständigen das magnetische Phasendiagramm.

In Kapitel 6 werden die von uns durchgeführten Messungen an $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$ vorgestellt und diskutiert. Das beinhaltet im Haus durchgeführte Messungen des elektrischen Transports mit und ohne angelegten Magnetfeld. Einen wesentlichen Beitrag für die Diskussion liefern allerdings die durchgeführten Hochfeldmessungen der Magnetisierung und der Magnetostriktion bis zu angelegten Feldern von bis zu 65 T. $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$ zeichnet sich durch einen ungewöhnlichen Phasenübergang in die antiferromagnetische Phase aus. Die Natur des ersten Ordnungsphasenübergangs ist bis heute noch nicht verstanden und wird unter dem Aspekt eines sogenannten „bootstrapping“-Effektes diskutiert. Dabei kommt die Frage auf, ob die Kristallfeldaufspaltung des Systems in Verbindung mit den Spinfluktuationen in der Nähe des magnetischen Phasenübergangs zu einer sich selbst verstärkenden Minimierung der energetischen Zustän-

de führt, die letztendlich die Bildung der antiferromagnetischen Phase begünstigt. Es konnte eine starke Anisotropie der kritischen Felder der Phasengrenzen (mindestens ein Faktor 5) zwischen der b - und c -Achse festgestellt werden. Außerdem konnten erstmals ganze Phasengrenzbereiche für die b - und a -Achse heraus gearbeitet werden, welche die ungewöhnliche Natur des Phasenübergangs in die antiferromagnetische Phase zusätzlich betonen, aber gleichzeitig neue Erkenntnisse liefert, die für ein allgemeines Verständnis des Systems notwendig sind. Die nachträgliche Charakterisierung der Kristalle, nach der Hochfeldstudie, zeigt zudem eine starke strukturelle Veränderung der Proben, wenn diese den Phasenübergang durchlaufen. Die Ergebnisse deuten darauf hin, dass mit jeder neuen Messung an den Einkristallen entstehende Mikrorisse zu einer Erhöhung des Restwiderstandes führen, der gewisse magnetische Signaturen dominieren kann. Allerdings können die Erkenntnisse der Untersuchungen für weitere experimentelle und theoretische Betrachtungen verwendet werden, die es ermöglichen sollten die ungewöhnliche Natur des erste Ordnungsphasenüberganges besser zu verstehen.

2. Grundlagen

In diesem Abschnitt sollen grundlegende physikalische Zusammenhänge im Kontext „Elektrischer Transport in Festkörpern“, sowohl was die theoretischen Konzepte als auch die experimentelle Umsetzung betrifft, präsentiert werden.

2.1. Theoretische Grundlagen

2.1.1. Einleitung: Der Elektrische Transport

Die hier gezeigten Beispiele richten sich nach der Notation von Ref. [2] und sollen eine Einführung und Übersicht über die gängigen Transportmechanismen, wie sie in der modernen Festkörperphysik behandelt werden, geben. Die Grundvoraussetzung für die Behandlung eines elektrischen Stromes beschreibt das Ohmsche Gesetz

$$\mathbf{j} = \sigma \mathbf{E}. \quad (2.1)$$

Der damit zusammenhängende elektrische Transport in Festkörpern ist durch den Gradienten des Potentials und das daraus resultierende elektrische Feld \mathbf{E} gegeben ($-\nabla\Phi = \mathbf{E}$). Bis heute konnten eine Reihe von Mechanismen des elektrischen Transportes entdeckt, charakterisiert und beschrieben werden, wobei folgende Effekte als Beispiel dienen:

1. Die Bewegung von elektrischen Quasipartikeln in Festkörpern, als erster bekannter Transportmechanismus, wurde erstmals von

Drude untersucht und beschrieben [3]. Diese Beschreibung wurde durch Sommerfeld [4, 5], Bloch [6], Landau [7] und weiteren fortgehend verbessert und verfeinert. Der Strom ist hierbei gegeben durch

$$\mathbf{j} = -\frac{e}{V} \sum_{\mathbf{k}} \mathbf{v}_{\mathbf{k}} F(\mathbf{k}). \quad (2.2)$$

$F(\mathbf{k})$ ist die Verteilungsfunktion (d. h., die Nicht-Gleichgewichtsbesetzung) der Quasiteilchenzustände \mathbf{k} (kurz für: \mathbf{k}, n, σ), welche die Energie $\varepsilon_{\mathbf{k}}$ und die Gruppengeschwindigkeit $\mathbf{v}_{\mathbf{k}} = \partial \varepsilon_{\mathbf{k}} / \partial (\hbar \mathbf{k})$ besitzen. V ist dabei das Probenvolumen.

2. Quasiteilchen, die durch Barrieren tunneln.
3. Supraleitender Stromfluss in Supraleitern. Der (Landau-Ginzburg) Ordnungsparameter ist $\psi = \sqrt{n_s} \exp(i\phi)$, und der Strom ohne Magnetfeld wird beschrieben durch

$$\mathbf{j}_S = -\frac{(2e)\hbar}{2mi} (\psi^* \nabla \psi - \psi \nabla \psi^*) = -2en_s \hbar \nabla \phi / m, \quad (2.3)$$

wobei angenommen wird, dass die supraleitende Elektronendichte n_s räumlich homogen verteilt ist. Durch die Verwendung der Maxwell-Gleichungen und systematisches Umformen kann dieser Ausdruck in die London Gleichung [8] überführt werden:

$$\nabla \times \mathbf{j}_S = -\frac{(n_s e^2)}{m} \mathbf{B} \quad (2.4)$$

4. Intrinsisch diffusive Ströme in verunreinigten Legierungen und metallischem Glas, etc.
5. „Hopping“-Ströme in ausgedünnten Elektronensystemen, wo die Zustände lokalisiert sind durch (i) Bindung an lokalisierten Defekten, (ii) Anderson-Lokalisierungen bei Bandbereichen in gestörten Materialien, oder (iii) Polaron verursachtes „self-trapping“ in Isolatoren.

6. Separierte Bewegung von Ladung und Spin in 1D Metallen („Luttinger-Flüssigkeiten“)
7. Kollektives Verschieben einer Ladungsdichtewelle durch Unordnungseffekte in Metallen, was ein Gap in der Bandstruktur mit sich führt.

Diese Beispiele lassen sich allerdings nur schwer in einer einheitlichen Theorie unterbringen, weshalb der Fokus im Folgenden auf der Entwicklung von einer Transporttheorie unter der Verwendung der Boltzmann-Gleichung liegen soll. Diese Formulierung kann dazu verwendet werden den spezifische Widerstand und magnetfeldabhängige Phänomene wie den Hall-Effekt, Magnetowiderstand usw. zu beschreiben, und welche im Rahmen dieser Arbeit experimentell genutzt werden. Die Herleitung der Leitfähigkeit dient gleichzeitig als Grundlage für die Verwendung der Vier-Punkt-Widerstandsmessung (die im Abschnitt 2.2.1 genauer erklärt wird). Außerdem werden zusätzliche Formalismen eingeführt, die bestehende Unzulänglichkeiten der Boltzmann-Gleichung berücksichtigen und verbessern. Dadurch entstehen zwar komplexere Theorien, die zunehmend schwerer auf die jeweiligen Materialsysteme angewendet werden können, aber gleichzeitig entwickeln sich dadurch die bestehenden Modelle wie die Boltzmann-Gleichung immer weiter hin zu einer einheitlichen Beschreibung des elektrischen Transportes in Festkörpern.

2.1.2. Leitfähigkeit und Boltzmann-Gleichung

Die in diesem Abschnitt hergeleitete Form der Boltzmann-Gleichung orientiert sich an dem Formalismus, der in [9] und [8] verwendet wird.

Die einfachste Betrachtungsweise für die Leitfähigkeit in einem Festkörper geht vom sogenannten Drude-Modell aus. Dabei werden die Elektronen in einem Metall mit den Atomen eines freien Gases verglichen. Die freien Elektronen können in diesem Bild untereinander und mit angenommenen positiven Atomrümpfen des Festkörpers stoßen. Den Ausgangspunkt für dieses Modell liefert somit die Bewegungsgleichung

für ein Elektron im elektrische Feld

$$m\dot{v} + \frac{m}{\tau}v_D = -eE. \quad (2.5)$$

Im stationären Fall ist $m\dot{v} = 0$ und zusammen mit (2.1) und der Stromdichte $j = nev_D$ ergibt sich die Drude-Formel geschrieben als spezifische Leitfähigkeit

$$\sigma = \frac{ne^2\tau}{m}, \quad (2.6)$$

mit n als Anzahl der Elektronen pro Einheitszelle mit der Masse m und der Ladung e . Hierbei ist τ die mittlere Stoßzeit. In vielen Messungen und Interpretation wird nicht nur die Leitfähigkeit σ verwendet, sondern auch der spezifische Widerstand $\rho = \frac{1}{\sigma}$.

Die Drude-Formel kann bei Raumtemperatur zwar für viele einfache Metalle verwendet werden, allerdings stößt diese Beschreibung schnell an ihre Grenzen. In dieser Beschreibung sind alle Elektronen in einem Festkörper am Strom und Ladungstransport beteiligt, was im scharfen Widerspruch zum Pauli-Prinzip steht. Außerdem kann durch die Annahmen im Drude-Modell nicht erklärt werden, warum der elektronische Beitrag der Elektronen zur Wärmekapazität bei Raumtemperatur im Modell um einen Faktor 100 zu groß ist und gleichzeitig das mittlere Geschwindigkeitsquadrat der Elektronen um einen Faktor 100 zu klein [8].

Erst die Einbeziehung der Quantenmechanik, wie es durch Sommerfeld geschehen ist, ermöglicht es die Unzulänglichkeiten des Drude-Modells zu überarbeiten. Es wird in diesem Kapitel auf eine genaue Betrachtung der Sommerfeld-Modells verzichtet und nur auf die Ergebnisse als Stützpfeiler für die Herleitung der sogenannten Boltzmann-Gleichung zurückgegriffen.

Um die einzelnen Streumechanismen und somit den elektrischen Transport in Festkörpern genauer zu beschreiben wird in aktuellen Betrachtungsweisen ein semiklassisches Bild verwendet. Mit der Boltzmann-Gleichung werden die Teilchen eines freien Elektronengases durch Wellenpakete mit wohldefinierten Ort \mathbf{r} und dem Kristallimpuls $\hbar\mathbf{k}$ beschrie-

ben. Außerdem wird das Pauli-Prinzip berücksichtigt. Damit können im Weiteren die Unzulänglichkeiten des Drude-Modells eliminiert werden und man erhält die Möglichkeit durch unterschiedliche Formalismen und Erweiterungen theoretische Beschreibungen der klassischen Transporteigenschaften (wie spezifischer Widerstand, Magnetowiderstand und Hall-Effekt) zu bilden. Ausgangspunkt hierbei ist die Verwendung einer Verteilungsfunktion $f(\mathbf{k}, \mathbf{r}, t)$, welche die Position \mathbf{r} und die Wellenzahl \mathbf{k} zu der Zeit t eines Elektrons im (\mathbf{r}, \mathbf{k}) -Phasenraum beschreibt. Damit ist

$$(4\pi^3)^{-1} f(\mathbf{k}, \mathbf{r}, t) d\mathbf{k} d\mathbf{r} \quad (2.7)$$

die Anzahl der Elektronen, welche in einem Element $d\mathbf{r}$ im Realraum und in $d\mathbf{k}$ zur Zeit t liegen. Wenn nun in einem homogenen Festkörper das Elektronengas im Gleichgewicht bei einer Temperatur T betrachtet wird, kann f durch die Fermi-Dirac-Statistik beschrieben werden:

$$f_0(\mathbf{k}, \mathbf{r}) = \frac{1}{\exp\left(\left[\frac{E(\mathbf{k}) - E_F(\mathbf{k})}{k_B T(\mathbf{r})}\right] + 1\right)}. \quad (2.8)$$

In diesem Fall wird das Fermi-Potential $E_F(\mathbf{k})$ explizit als chemisches Fermi-Potential betrachtet, denn für die meisten Metalle bis Raumtemperatur sind beide Ausdrücke identisch [8].

Wenn die Möglichkeit zur Streuung zugelassen wird, können Elektronen ihren Impuls diskontinuierlich ändern, was eine kontinuierliche Impulsänderung des Elektronenensembles bedeutet und es gilt

$$\frac{df}{dt} = \left(\frac{\partial f}{\partial t}\right)_{streu}. \quad (2.9)$$

Die rechte Seite gibt dabei die Änderung der Verteilungsfunktion während eines Streuprozesses an. Mit $f(\mathbf{k}, \mathbf{r}, t)$ kann das totale Differential auf der linken Seite umgeschrieben werden zu

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \frac{\partial f}{\partial \mathbf{r}} \frac{d\mathbf{r}}{dt} + \frac{\partial f}{\partial \mathbf{k}} \frac{d\mathbf{k}}{dt} = \left(\frac{\partial f}{\partial t}\right)_{streu}. \quad (2.10)$$

Werden nun ein elektrisches Feld \mathbf{E} und ein magnetisches Feld \mathbf{H} angelegt, können die Differentenquotienten der linken Seite unter Verwendung

von Energie-Kraft-Geschwindigkeits-Beziehungen umgeschrieben werden zu

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \mathbf{v}(\mathbf{k}) \frac{\partial f}{\partial \mathbf{r}} + \frac{e}{\hbar} [\mathbf{E} + \mathbf{v}(\mathbf{k}) \times \mathbf{H}] \frac{\partial f}{\partial \mathbf{k}} = \left(\frac{\partial f}{\partial t} \right)_{streu}, \quad (2.11)$$

was im Allgemeinen als Boltzmann-Gleichung bekannt ist. In einer einfacheren Schreibweise und nach Umformung werden die einzelnen Funktionen der jeweiligen Terme deutlich

$$\left(\frac{\partial f}{\partial t} \right)_{Ges.} = - \left(\frac{\partial f}{\partial t} \right)_{Diffusion} - \left(\frac{\partial f}{\partial t} \right)_{Kraft} + \left(\frac{\partial f}{\partial t} \right)_{Streuung}. \quad (2.12)$$

Mit dieser Gleichung lassen sich nun im Detail die verschiedenen Transportmechanismen in einem Festkörper beschreiben. Dabei berechnet man in den jeweiligen Termen entweder, wie sich die Verteilungsfunktion durch Anlegen unterschiedlicher Felder und/oder Variation der Temperatur ändert, oder man bestimmt die elektrische und thermische Leitfähigkeit sowie ihre Abhängigkeit von magnetischen Feldern und weiteren thermoelektrischen Effekten.

Auch wenn die oben gezeigte Form einen einfachen Eindruck vermittelt, so ist das Lösen der Gleichung in dieser Form in der Regel äußerst schwierig. Aus diesem Grund werden für allgemeine Betrachtungen vereinfachte Formen der Boltzmann-Gleichung verwendet.

Dazu nimmt man eine homogene Verteilung der Zustände im \mathbf{k} -Raum an und behandelt lediglich nur eine kleine Menge an Störungen in der Gleichgewichtsfunktion. Somit betrachtet man anstatt alle $\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{k}'$ ausschließlich eine kleine Änderung $d\mathbf{k}$ von \mathbf{k} in einem Volumen Ω , also $d\mathbf{k}\Omega/(2\pi)^3$ [10]. Außerdem wird eine Hilfsgröße $Q_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}$ eingeführt, die die Wahrscheinlichkeit pro Zeit angibt, mit der ein Elektron mit Wellenvektor \mathbf{k} in das Volumen $d\mathbf{k}'$ gestreut wird, ohne seine Spinrichtung zu ändern:

$$Q_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} d\mathbf{k}' \frac{\Omega}{(2\pi)^3}. \quad (2.13)$$

Eine Änderung der Verteilungsfunktion f im Streufall entspricht einer

Änderung der Verteilungsfunktion f_0 aus dem Gleichgewicht

$$f(\mathbf{k}, \mathbf{r}, t) = f_0(\mathbf{k}, \mathbf{r}) + g(\mathbf{k}, \mathbf{r}, t). \quad (2.14)$$

Es werden nur kleine Felder betrachtet und somit lässt sich der Streuterm der Boltzmann-Gleichung schreiben als

$$\left(\frac{\partial f}{\partial t} \right)_{streu} = \frac{\Omega}{(2\pi)^3} \int (g_{\mathbf{k}'} - g_{\mathbf{k}}) Q_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} d\mathbf{k}'. \quad (2.15)$$

Dadurch ergibt sich unter Verwendung von Additionstheoremen die linearisierte Form der Boltzmann-Gleichung (ohne $\mathbf{v}(\mathbf{k}) \times \mathbf{H}$ -Magnetfeldterm)

$$\mathbf{v}(\mathbf{k}) \frac{\partial f_0}{\partial T} \nabla_r T + \mathbf{v}(\mathbf{k}) \cdot e \frac{\partial f_0}{\partial E_{\mathbf{k}}} \mathbf{E} = \frac{\Omega}{(2\pi)^3} \int (g_{\mathbf{k}'} - g_{\mathbf{k}}) Q_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} d\mathbf{k}'. \quad (2.16)$$

Diese Gleichung lässt sich noch leichter behandeln, wenn man annimmt, dass die Verteilungen exponentiell relaxieren, falls das elektrische Feld abgeschaltet wird, nachdem sich ein zeitlich konstanter Ungleichgewichtszustand eingestellt hat. Dies wird auch Relaxationszeit-Näherung genannt und macht aus

$$\left(\frac{\partial f}{\partial t} \right)_{streu} = -\frac{f - f_0}{\tau(\mathbf{k})} = -\frac{g_{\mathbf{k}}}{\tau(\mathbf{k})}. \quad (2.17)$$

Dabei ist $\tau(\mathbf{k})$ die Relaxationszeit und es wird vorausgesetzt, dass die Streuungen elastisch sind und die Fermi-Fläche sphärisch [8].

Möchte man nun die Leitfähigkeit für einen Festkörper aus der Boltzmann-Gleichung ableiten, bestimmt man die Stromdichte $\mathbf{J}(\mathbf{r}, t)$ an einer Position \mathbf{r} und integriert die Verteilung $e\mathbf{v}(\mathbf{k})$ für alle Elektronen:

$$\mathbf{J}(\mathbf{r}, t) = \frac{e}{4\pi^3} \int \mathbf{v}(\mathbf{k}) f(\mathbf{k}, \mathbf{r}, t) d\mathbf{k}. \quad (2.18)$$

Es fließt kein Strom, wenn alle Elektronen im Gleichgewicht sind ($\int \mathbf{v}(\mathbf{k}) f_0 d\mathbf{k} = 0$) und Gl. (2.18) wird zu

$$\mathbf{J}(\mathbf{r}, t) = \frac{e}{4\pi^3} \int \mathbf{v}(\mathbf{k}) g_{\mathbf{k}} d\mathbf{k}. \quad (2.19)$$

Nun kann durch Verwendung der linearisierten Boltzmann-Gleichung (2.16), der Relaxationszeit-Näherung (2.17), einer Transformation die im Anhang B in [9] nachzuschlagen ist und der vektoriellen Schreibweise des Ohmschen Gesetzes (2.1) der Leitfähigkeitstensor σ_{ij} aufgestellt werden:

$$\sigma_{ij} = \frac{e^2}{4\pi^3\hbar} \int \frac{\tau(\mathbf{k})v_i(\mathbf{k})v_j(\mathbf{k})dS}{|\mathbf{v}(\mathbf{k})|}. \quad (2.20)$$

dS ist hierbei ein Flächenelement auf der Fermi-Fläche und in kubischen Festkörpern wird der Leitfähigkeitstensor ein Skalar

$$\sigma = \frac{e^2}{12\pi^3\hbar} \int \tau(\mathbf{k})v(\mathbf{k})dS. \quad (2.21)$$

Daraus lässt sich wiederum die einfache Form der Drude-Gleichung bilden. Dafür nimmt man lediglich n freie Elektronen mit $mv = \hbar k_f$ der Fermi-Kugel $\frac{4}{3}\pi k_f^3/(4\pi^3)$. Darüber hinaus zeigt der Leitfähigkeitstensor in dieser Schreibweise, dass die Leitfähigkeit in einem Metall lediglich durch die Elektronen mit Geschwindigkeit $v(\mathbf{k})$ bestimmt wird, die sich auf der Fermi-Fläche befinden. Somit sind nur Elektronen bei der Fermi-Energie am Ladungstransport beteiligt.

2.1.3. Temperaturabhängiger Widerstand

Betrachtet man den spezifischen Widerstand ρ eines Festkörpers im Rahmen des Drude-Modells, werden zusätzlich zu den oben erwähnten Unzulänglichkeiten, weitere Einflüsse nicht berücksichtigt, die bei allen Messungen des elektrischen Transportes eine wesentliche Rolle spielen. Die Unordnungseffekte, die von Gitterfehlstellen, Verzerrungen und Fremdatome herrühren oder aber durch thermische Anregung des Gitters entstehen, lassen reelle Systeme zwar deutlich komplexer werden, geben aber gleichzeitig die Möglichkeit durch ihre Untersuchung ein tiefes Verständnis über die grundlegenden Eigenschaften eines Stoffes und daraus resultierende Phänomene zu erhalten.

Bei einer phänomenologischen Beschreibung des spezifischen Widerstandes betrachtet man die mittlere Streuzeit τ , die zwischen zwei

Streuprozessen eines Elektrons liegt. Werden dabei unterschiedliche Streuprozesse (τ_0 bei Störstellen und Verunreinigungen und τ_h durch alle weiteren Prozesse) berücksichtigt, liefert die Relaxationszeitnäherung aus Gl. (2.17)

$$\frac{1}{\tau_{tot}} = \frac{1}{\tau_0} + \frac{1}{\tau_h}. \quad (2.22)$$

Die mittlere Streuzeit lässt sich also als Summe der einzelnen Streuzeiten, die von den jeweiligen Streuprozessen herrühren verstehen. Mit einem Rückgriff auf die Drude-Gl. (2.6) ergibt sich

$$\rho = \frac{m}{ne^2\tau_{tot}} = \frac{m}{ne^2} \frac{1}{\tau_0} + \frac{m}{ne^2} \frac{1}{\tau_h}. \quad (2.23)$$

Somit ist der spezifische Widerstand eines Festkörpers die Summe aller einzelnen Streumechanismen. Dies ist die sogenannte Matthiesen-Regel. Mit dieser Regel und der Annahme, dass Unordnungseffekte bei tiefen Temperaturen nicht von der Temperatur abhängen, lässt sich der gesamte spezifische Widerstand $\rho_{tot}(T)$ schreiben als

$$\rho_{tot} = \rho_0 + \rho_h(T). \quad (2.24)$$

Hiebei ist ρ_0 der sogenannte residuelle Restwiderstand und $\rho_h(T)$ der Anteil, der materialspezifisch die Charakteristiken des temperaturabhängigen Widerstandverlaufes enthält. Diese Betrachtung gilt nur, wenn die Streuung an Verunreinigungen und Phononen unabhängig voneinander sind und wenn die oben erwähnte Relaxationszeit isotrop ist. Diese Annahme spiegelt natürlich nur selten die Realität wieder, da die Verunreinigungen und Fehlstellen in einem Festkörper, die das ρ auszeichnet, bei endlichen Temperaturen auch durch thermisch bedingte Gitterschwingungen beeinflusst werden. Für viele leitende Stoffe mit einer hohen Reinheit und Kristallinität bietet die Matthiesen-Regel allerdings eine gute Möglichkeit, um eine grundlegende Charakterisierung des Stoffes vorzunehmen. Betrachtet man zusätzlich die Streuung durch magnetische spinabhängige Streuung in einem Festkörper, so erweitert sich Gl. (2.24) zu

$$\rho_{tot} = \rho_0 + \rho_p(T) + \rho_m(T). \quad (2.25)$$

Dabei ist $\rho_p(T)$ nun explizit der phononenbedingte Anteil und $\rho_m(T)$ ist der temperaturabhängige Anteil, der von Spinunordnung verursacht wird.

2.1.4. Spinfluktuationen

Im vorangegangenen Abschnitt wurde deutlich, dass Spinfluktuationen einen erheblichen Einfluss auf die Transporteigenschaften eines Festkörpers haben können. Zusammen mit der Elektron-Elektron Wechselwirkung, die im einfachsten Fall eine $\rho \propto T^2$ -Abhängigkeit liefert (vgl. Ref. [8]), und der Elektron-Phonon-Streuung, die bei der Debye-Temperatur θ_D im Hochtemperatur-Regime $\rho \propto T$ liefert und in ein $\rho \propto T^5$ -Verhalten übergeht (aus der Grüneisen-Formel vgl. [11]), kann die allgemeine T -Abhängigkeit des spezifischen Widerstandes eines Festkörpers bei $T \ll \Theta_D$ sehr komplex werden. In einigen Metallen reichen jedoch die oben erwähnten theoretischen Grundlagen aus, um relativ präzise Vorhersagen über das Temperaturverhalten des spezifischen Widerstandes zu machen (vgl. Abb. 2.1). Außerdem lässt sich durch Vereinfachungen, die zum Beispiel die Matthiesen-Regel liefert, und grundlegende Charakterisierungen, der spezifische Widerstand in seine Bestandteile zerlegen. Dadurch ist es möglich Systeme, in denen die jeweiligen Wechselwirkungen und Strukturen hinreichend bekannt sind, auf ihr Spinfluktuationsspektrum zu untersuchen.

Um den Einfluss magnetischer Ordnung auf den spezifischen Widerstand zu diskutieren, wird exemplarisch die momentane Magnetisierung in einem ferromagnetischen Metall betrachtet. Für Nickel zeigt $\rho(T)$ im Nullfeld eine Anomalie bei der Curietemperatur T_C . Wie Abb. 2.2 zeigt, ist das Verhalten oberhalb von T_C mit dem eines paramagnetischen Metalls zu vergleichen. Aus diesem Grund wurde in der Abbildung ebenfalls der temperaturabhängige Nullpunkt-widerstand von Palladium aufgetragen, welches als ein Beispiel für ein paramagnetisches Metall angesehen werden kann. Welches Verhalten der spezifische Widerstand bei T_C genau hat, ist bei den meisten magnetischen Materialien sowohl aus theoretischer Sicht als auch von experimenteller Seite sehr komplex

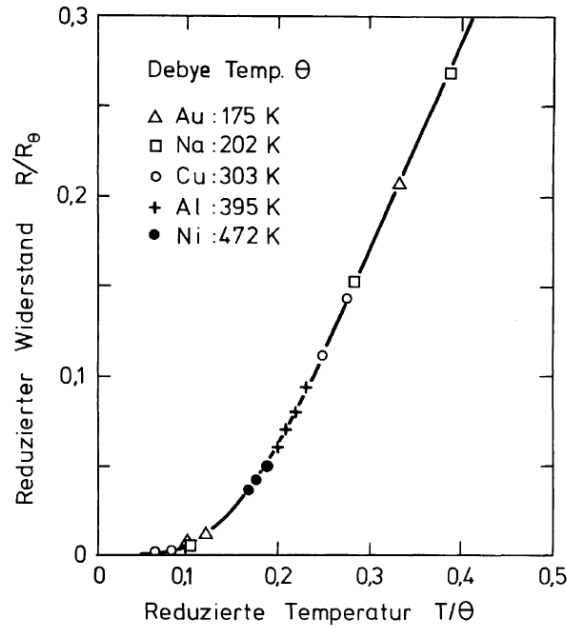


Abbildung 2.1.: Auf die Debye-Temperatur normierte Darstellung des gemessenen spezifischen Widerstand von unterschiedlichen einelementigen Stoffen. Die durchgezogene Linie wurde durch die Grüneisen-Formel bestimmt und kann bei einfachen metallischen Systemen die Messwerte sehr gut widerspiegeln; aus Ref. [11] entnommen.

und wird oft eher auf einer phänomenologischen Basis diskutiert. Das selbe gilt für die T -Abhängigkeit des spezifischen Widerstandes. Zwar lässt sich, wie oben mit der Matthiessen-Regel beschrieben, eine Parameterisierung in die einzelnen Prozesse vornehmen, aber ein Zusammenspiel und eine Gewichtung der einzelnen Anteile ist allein aus der Messung des spezifischen Widerstandes nur selten möglich. Allerdings konnte gezeigt werden, dass sich für schwachferromagnetische itinerante Systeme wie Ni_3Al , MnSi , ZrZn_2 und Sc_3In aus der Betrachtung der Spinfunktuationstheorie sehr präzise Vorhersagen treffen lassen, bei welcher Temperatur T_C auftritt. Aus Ref. [12] lässt sich entnehmen, dass T_C mit

$$T_C = 1.419 p_s^{3/2} (\bar{A} \alpha_0 v_0)^{3/4} \Gamma_0^{1/4} \quad (2.26)$$

beschrieben werden kann, wobei die einzelnen Parameter aus der „Self-Consistent Renormalization Theory“ (SCR)-Theorie abgeleitet werden.

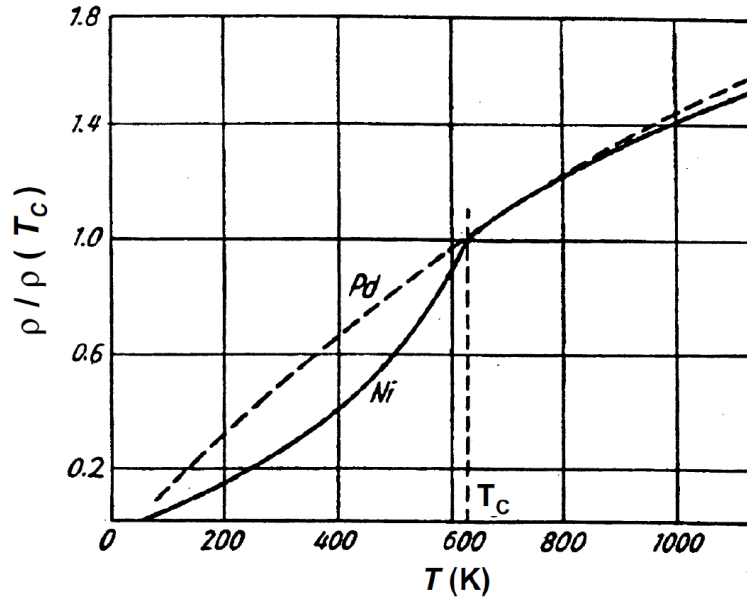


Abbildung 2.2.: Temperaturabhängiger spezifischer Widerstand im Nullfeld von Nickel und Palladium. Zum besseren Vergleich wurden die beiden Verläufe auf den Widerstand der Curietemperatur T_C von Nickel normiert; aus Ref. [13] entnommen.

Hierbei ist p_s und $\alpha_0 = 2M(0)/N_0$ (mit N_0 als Anzahl der Atome im Festkörper und $M(0)$ als Magnetisierung bei $T = 0$ K), $\bar{A} = AN_0/\rho$ und $\Gamma_0 = A/C$ mit ρ als Zustandsdichte bei der Fermi-Energie und A , C als Expansionskoeffizienten, die aus Neutronenstreuungsmessungen und Bandstrukturrechnung bestimmt werden können und v_0 ist das atomare Volumen. In Ref. [12] ist ebenfalls dargestellt, wie dicht die theoretisch berechneten Werte für T_C mit den experimentell bestimmten Daten übereinstimmen. Im folgenden soll das Verhalten von Spinfluktuationen in itineranten Systemen durch die Messung des spezifischen Widerstandes und der magnetische Einfluss eines extern angelegten Magnetfeldes genauer betrachtet werden. Dafür wird als Grundlage die oben erwähnte SCR-Theorie aus Ref. [12] verwendet. Mit dieser Theorie konnte das Verhalten von Spinfluktuationen in schwach bzw. nahezu ferromagnetischen Materialien detailliert erfasst und beschrieben werden. Außerdem zeigen eine Reihe von Experimenten an exemplarischen itineranten Systemen wie zum Beispiel ZrZn_2 und Sc_3In die bisherige Güte dieser Theorie (siehe unten). Die komplette Herleitung der SCR-Theorie würde den

Rahmen dieser Arbeit sprengen, weshalb hier lediglich die Auswirkungen auf das Widerstandsverhalten und deren Abhängigkeit von extern angelegten Magnetfeldern in schwach bzw. beinahe ferromagnetische Metalle aufbereitet werden. Dies bildet zugleich die Grundlage für die Betrachtung der Hochfeldmessungen an MnSi, da die Resultate der SCR-Theorie bezüglich des Widerstandes in extern angelegten Magnetfeldern einen wesentlichen Bestandteil der Auswertung darstellt (vgl. Kapitel MnSi).

Wie oben erwähnt bringt die Elektron-Elektron-Streuung eine T^2 -Abhängigkeit bei tiefen Temperaturen, und der residuelle Restwiderstand (durch Verunreinigungen) ist durch R_0 gegeben. Damit lässt sich der gemessene Widerstand aufgrund der Matthiesen-Regel schreiben als

$$R = R_0 + R_2 T^2. \quad (2.27)$$

Für den Tieftemperaturbereich wurde durch die „Random-Phase-Approximation-Theory“ (RPA) von Schindler et al. [14] herausgearbeitet und experimentell bestätigt, dass R_2 stark von einem Spinfluktuationsparameter α abhängt

$$R_2 \propto (1 - \alpha)^{-1/2}, \quad (2.28)$$

wobei Mathon [15] bestimmen konnte, dass im kritischen Grenzfall $\alpha = 1$

$$R - R_2 \propto T^{5/3} \quad (2.29)$$

gilt. Dies gilt allerdings nur im Tieftemperaturgrenzfall (vgl. Abb. 2.3) und es heißt, dass die RPA-Theorie nicht in der Lage sei den gesamten Temperaturbereich abzudecken. Aus diesem Grund muss für eine allgemeingültige Beschreibung die RPA-Theorie durch die SCR-Theorie erweitert werden. Für schwach bzw. beinahe ferromagnetische Materialien haben Ueda et al. aus der SCR-Theorie eine Beschreibung für das Verhalten von R_2 bestimmt, indem sie die dynamische Suszeptibilität der SCR-Theorie (siehe [12, 16]) verwendet haben. Diese Betrachtung mündet in Gl. (2.30) für beinahe ferromagnetische Metalle und Gl. (2.31) für schwach ferromagnetische Metalle:

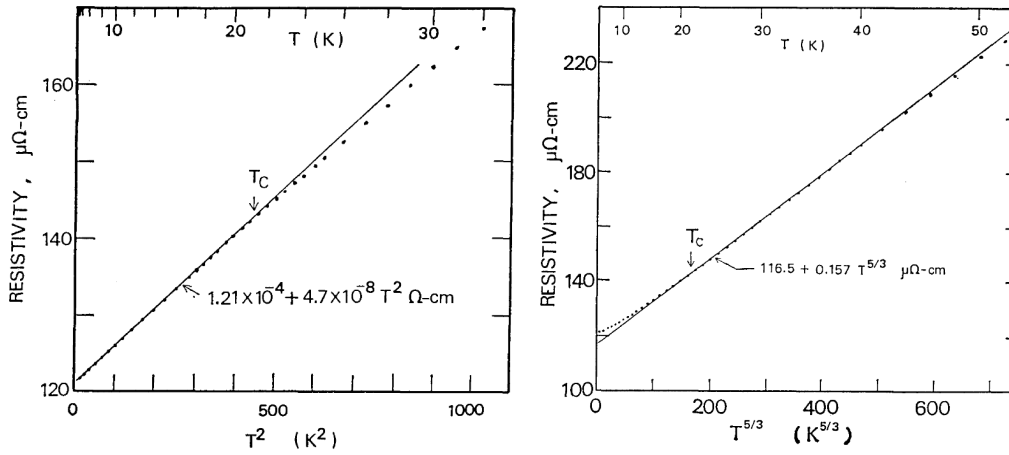


Abbildung 2.3.: Anwendung der RPA-Theorie auf ZrZn_2 . Unterhalb T_C ist eine klare T^2 -Abhängigkeit zu erkennen, die in eine $T^{(5/3)}$ -Abhängigkeit übergeht. Die Punkte sind gemessene Daten, die durchgezogenen Linien stellen die Vorhersagen von theoretischer Seite da; aus Ref. [17] entnommen.

$$\begin{aligned}
 h &= Z(Z^2 + 1) \\
 \frac{R}{R_0} &= \frac{2}{3} \left\{ \frac{1}{\sqrt{Z^2 + 1}} \left(1 - \frac{2}{\pi} \tan^{-1} \frac{Z}{\sqrt{\tilde{L}(Z^2 + 1)}} \right) \right. \\
 &\quad \left. + \frac{2}{\pi} \frac{\sqrt{\tilde{L}}Z}{Z^2 + \tilde{L}(Z^2 + 1)} \right\} + \frac{1}{3} \frac{1}{\sqrt{3Z^2 + 1}}
 \end{aligned} \tag{2.30}$$

mit $h = H[L(2\alpha\delta_0/3L)^{3/2}]^{-1}$, $Z = \zeta(2\alpha\delta_0/3L)^{-1/2}$ und $\tilde{L} = 27L/8A$. H ist das extern angelegte Magnetfeld, Z entspricht einer reduzierten Magnetisierung (wobei ζ die Magnetisierung pro Elektron ist), $L/4$ ist der Entwicklungskoeffizient des M^4 -Termes der freien Energie in einer Ginzburg-Landau-artigen Parameterisierung und kann durch eine Arroth-Plot-Analyse bestimmt werden, A ist wiederum der Expansionskoeffizient (vgl. Gl. (2.26)) und α und δ_0 setzen sich aus verschiedenen Komponenten der Suszeptibilität zusammen.

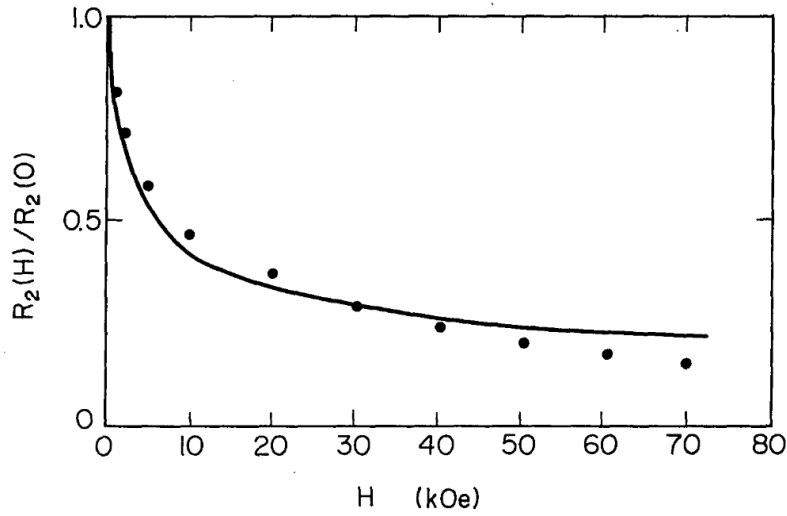


Abbildung 2.4.: Theoretische Vorhersage nach Gl. (2.31) aus der SCR-Theorie und Messung von $R_2(B)/R_2(B = 0)$ für Sc_3In als Beispiel für ein schwach ferromagnetisches System; aus Ref. [18] entnommen.

$$h = Z(Z^2 - 1)$$

$$\frac{R}{R_0} = \left[\frac{1}{2} \left\{ \frac{1}{\sqrt{\tilde{L}(Z^2 - 1)}} \left(\frac{\pi}{2} - \tan^{-1} \frac{Z}{\sqrt{\tilde{L}(Z^2 - 1)}} \right) + \frac{Z}{Z^2 + \tilde{L}(Z^2 - 1)} \right\} + \frac{\pi}{8} \frac{1}{\sqrt{\tilde{L}(3Z^3 - 1)}} \right] \left[1 + \frac{\pi}{8} \frac{1}{\sqrt{2\tilde{L}}} \right]^{-1} \quad (2.31)$$

mit $h = H/L\zeta_0^3$ und $Z = \zeta/\zeta_0$ (ζ_0 ist die Magnetisierung pro Elektron und $H = 0$ T. Entscheidender Punkt für die Betrachtung der Spinfluktuationen von MnSi ist der Grenzfall für starke Magnetfelder ($h \gg 1$) von Gleichung (2.30). In diesem Fall folgt $R/R_0 \propto h^{-1/3}$, bzw. genauer

$$R_2(B)/R_2(B = 0) \propto \sqrt{\frac{\chi_0}{\chi L^{1/3}}} B^{-1/3} \quad (2.32)$$

mit χ_0 als Suszeptibilität eines nicht wechselwirkenden Elektronensystems, χ als Suszeptibilität eines wechselwirkenden Elektronensystemes. Dieser

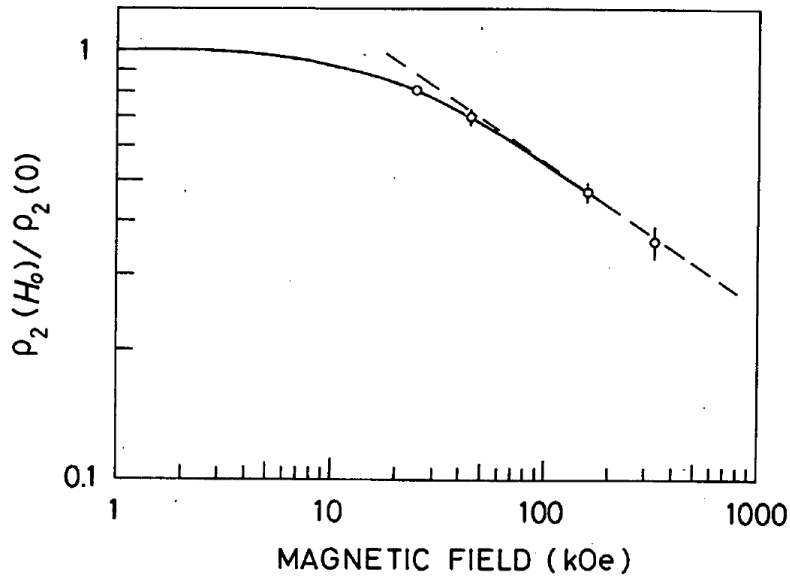


Abbildung 2.5.: Hochmagnetfeldmessung von $R_2(B)/R_2(B = 0)$ für MnSi als Beispiel für ein beinahe ferromagnetisches System. Die Punkte entstammen aus den Messungen von Sakakibara et al. und die gestrichelte Linie verdeutlicht die $H^{-1/3}$ -Abhängigkeit des T^2 -Termes; aus Ref. [1] entnommen.

Argumentation folgend haben für die Untersuchung der Spinfluktuationen in beinahe ferromagnetischen Metallen Sakakibara et al. eine Hochmagnetfeldstudie an MnSi durchgeführt [1]. In den Ergebnissen ist sehr gut die $H^{-1/3}$ -Abhängigkeit für hohe Magnetfelder zu erkennen (vgl. Abb. 2.5). In der Regel liefert die SCR-Theorie gute Vorhersagen für viele itinerante Systeme und ihre thermodynamischen und elektrischen Eigenschaften. Diese Vorhersagen können zusammen mit Experimenten verwendet werden, um einerseits die unterschiedlichen Verbindungen miteinander zu vergleichen und so herausgearbeitete Effekte besser zu verstehen oder aber auch, um eine probenspezifische Eigenschaft an sich genauer zu untersuchen.

2.1.5. Kondo-Effekt

Um das breite Spektrum der Transportmechanismen abzudecken, die im Rahmen dieser Arbeit auftreten, müssen noch die Effekte in stark korrelierten Elektronensystemen berücksichtigt werden. Aus diesem Grund wird kurz der Kondo-Effekt genauer beleuchtet, der auftreten kann, wenn Leitungselektronen mit lokalisierten magnetischen Momenten wechselwirken. Denn für den elektrischen Widerstand bedeuten diese magnetischen Verunreinigungen einen Anstieg der Zahl der möglichen Streuzentren. Da der Phononenanteil in $\rho(T)$ eines Festkörpers mit T^5 zu kleiner werdenden Temperaturen abnimmt, überwiegt die Streuung an den lokalisierten magnetischen Störstellen erst bei tiefen Temperaturen.

Wie oben beschrieben würde der Widerstand eines nicht magnetischen Metalls bis zum residualen Restwiderstand monoton abfallen. Die ersten magnetischen Materialien bei tiefen Temperaturen wurden von W. Meissner und B. Voigt [19] 1930 im Rahmen einer groß angelegten Elementstudie gemessen. In diesen Legierungen ist erst ein Abfall des spezifischen Widerstandes mit steigender Temperatur zu verzeichnen, welche in einem Widerstandsminimum in der Größenordnung von 10 K mündet. Dieser Effekt wird besonders deutlich, wenn man ein nicht magnetisches Metall wie Cu in geringen Mengen mit Fe dotiert und den elektrischen Widerstand bei tiefen Temperaturen misst (vgl. Abb. 2.6). Kondo konnte zeigen, dass dieses Minimum ausschließlich auftritt, wenn die relevanten Streuzentren ein magnetisches Moment besitzen [20]. Während des Streuprozesses klappt der Elektronenspin der Leitungselektronen um, wenn sie mit den lokalen Momenten wechselwirken. Da der Umklappprozess der Elektronenspins durch eine Veränderung des Spins der magnetischen Streuzentren kompensiert wird, kann dadurch eine potenzielle magnetische Ordnung unterdrückt werden. Darüber hinaus wird durch diesen Vorgang laut Kondo der Querschnitt der magnetischen Streuung in der Störungstheorie höherer Ordnung divergent, was zu einem unendlichen Widerstand an diesen Stellen führt. Diese Divergenz tritt nur bei tiefen Temperaturen auf, wenn die Verteilung der Wellenvektoren der Leitungselektronen bei einem bestimmten Wellenvektor scharf

abbrechen [8]. Für die theoretische Beschreibung wurde von Kondo in Ref. [20] folgender Hamiltonian verwendet

$$H = H_0 + H'. \quad (2.33)$$

Hierbei beschreibt H_0 den ungestörten Fall:

$$H_0 = \sum_{\mathbf{k}s} \varepsilon_{\mathbf{k}} a_{\mathbf{k}s}^\dagger a_{\mathbf{k}s}, \quad (2.34)$$

mit $\varepsilon_{\mathbf{k}}$ als Ein-Elektronenergie des Leitungselektrons mit der Wellenzahl \mathbf{k} , $a_{\mathbf{k}s}^\dagger$ und $a_{\mathbf{k}s}$ sind der Erzeugungsoperator und der Vernichtungsoperator und s beschreibt die Spinkomponente in z -Richtung. Der Störungsanteil im Hamiltonian wird durch die Komponente H' beschrieben:

$$H' = -(J/N) \sum_{n\mathbf{k}\mathbf{k}'} \exp \{i(\mathbf{k} - \mathbf{k}') \cdot \mathbf{R}_n\} \quad (2.35)$$

$$\times \left\{ (a_{\mathbf{k}' +}^\dagger a_{\mathbf{k} +} - a_{\mathbf{k}' -}^\dagger a_{\mathbf{k} -}) S_{nz} + a_{\mathbf{k}' +}^\dagger a_{\mathbf{k} -} S_{n-} + a_{\mathbf{k}' -}^\dagger a_{\mathbf{k} +} S_{n+} \right\},$$

hierbei ist \mathbf{R}_n der Positionsvektor der n -ten magnetischen Störstelle, dessen Spinoperator durch \mathbf{S}_n beschrieben wird. Der Operator $S_{n\pm}$ ist definiert als $S_{nx} \pm iS_{ny}$. N ist die Gesamtanzahl der Atome im Festkörper und J beschreibt die Größe des Austausches zwischen den lokalisierten Elektronen und Leitungselektronen. Zusammen mit dem Ergebnis aus der Boltzmann-Gleichung für die skalare Leitfähigkeit in Gl. (2.21) und der zweiten Born-Näherung konnte Kondo für den Kondo-Effekt $\rho_{Kondo} \propto \log T$ ableiten.

Der experimentell beobachtete Kondo-Effekt ist somit ein Zusammenspiel aus dem phononischen Beitrag im Widerstand und dem anwachsenden Widerstand durch Streuung an den oben beschriebenen magnetischen Störstellen. Im Fall eines unmagnetischen Metalls mit magnetischen Störstellen (z.B. mit Eisen dotiertes Kupfer vgl. Abb. 2.6) lässt sich der Verlauf des temperaturabhängigen spezifischen Widerstandes phänomenologisch schreiben als

$$\rho(T) = \rho_0 + aT^5 - b\rho_1 \log T \quad (2.36)$$

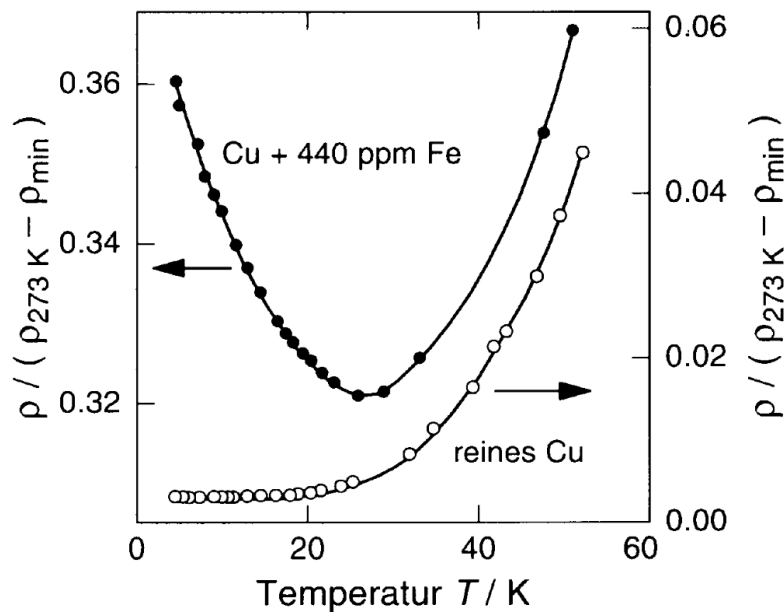


Abbildung 2.6.: Spezifischer Widerstand von reinem Cu und Cu mit magnetischen Fe-Verunreinigungen; aus Ref. [22] entnommen.

mit a , b , ρ_0 und ρ_1 als materialspezifische Konstanten, wobei b durch die Konzentration der magnetischen Verunreinigungen bestimmt wird und ρ_1 proportional zu J ist. Die Divergenz des log-Anteils zu tieferen Temperaturen könnte im Folgenden durch die Renomalisierungsgruppen-Analyse von Wilson korrigiert werden, so dass der Kondo-Effekt von theoretischer Seite umfassend beschrieben werden kann (vgl. Ref. [21]).

2.1.6. Hall-Effekt und Magnetowiderstand

Wie oben erwähnt lassen sich auch der Hall-Effekt und der Magnetowiderstand aus der Boltzmann-Gleichung ableiten. Da diese Herleitung zusätzlich Informationen über die einzelnen Prozesse des elektrischen Transportes liefert, wird im Folgenden genauer auf die Annahmen und Herleitung des Hall-Effektes und des Magnetowiderstandes eingegangen. Als Ausgangslage wird die linearisierte Boltzmann-Gleichung Gl. (2.16) (inkl. Magnetfeldterm), die Relaxationszeitnäherung Gl.(2.17) und ein

diffusiver Streuterm $\left(\frac{\partial f}{\partial t}\right)_{Diff} = 0$ angenommen und ausformuliert:

$$\frac{e}{\hbar}(\mathbf{v}(\mathbf{k}) \times \mathbf{H}) \cdot \frac{\partial g_{\mathbf{k}}}{\partial \mathbf{k}} + e\mathbf{E} \cdot \mathbf{v}(\mathbf{k}) \frac{\partial f_0}{\partial E_{\mathbf{k}}} = -\frac{g_{\mathbf{k}}}{\tau(\mathbf{k})}. \quad (2.37)$$

Für freie Elektronen kann angenommen werden, dass $\hbar\mathbf{k} = m\mathbf{v}$ gilt, und ein Hilfsvektor \mathbf{A} wird so gewählt, dass der geometrische Zusammenhang zwischen den beiden Feldern \mathbf{E} und \mathbf{H} dargestellt werden kann. Außerdem wird eine Relation benötigt, die sich aus einer vereinfachten Form der linearisierten Boltzmann-Gleichung ergibt:

$$g_{\mathbf{k}} = \left(-\frac{\partial f_0}{\partial E_{\mathbf{k}}}\right) \tau \mathbf{v}(\mathbf{k}) \cdot e\mathbf{A}. \quad (2.38)$$

In Gl. (2.37) eingesetzt und zusammengefasst erhält man

$$\mathbf{v} \cdot \mathbf{E} = \mathbf{v} \cdot \mathbf{A} + \frac{e\tau}{m}(\mathbf{v} \times \mathbf{H}) \cdot \mathbf{A}. \quad (2.39)$$

Für alle \mathbf{v} ergibt sich durch Permutation des Skalar- und Kreuzproduktes

$$\mathbf{E} = \mathbf{A} + \frac{e\tau}{m}(\mathbf{H} \times \mathbf{A}). \quad (2.40)$$

Betrachtet man nun das Ohmsche Gesetz von Gl. (2.1) unter der Verwendung des Hilfsvektors \mathbf{A} als elektrisches Feld \mathbf{E} und setzt es in Gl. (2.40) ein, ergibt sich eine aussagekräftige Form des elektrischen Feldes:

$$\begin{aligned} \mathbf{E} &= \frac{1}{\sigma} \mathbf{J} + \frac{e\tau}{m} \mathbf{H} \times \frac{1}{\sigma} \mathbf{J} \\ &= \rho \mathbf{J} + \frac{e\tau}{m} \rho \mathbf{H} \times \mathbf{J}. \end{aligned} \quad (2.41)$$

Hierbei ist ρ der von oben bekannte spezifische Widerstand. In dieser Gleichung wird durch die beiden Terme deutlich, dass das elektrische Feld aus zwei Komponenten besteht. Der erste Term zeigt, dass ρ für $E \parallel J$ nicht vom angelegten Magnetfeld abhängt. Mit anderen Worten, in einem stromdurchflossenen Leiter gibt es keinen Magnetowiderstand in dieser Konfiguration und unter den oben getroffenen Annahmen. Der zweite Term allerdings zeigt eine Abhängigkeit von \mathbf{H} und für $\mathbf{H} \perp \mathbf{J}$, lässt sich der Term allein betrachtet als

$$E_H = \frac{e\tau}{m} H J \quad (2.42)$$

schreiben. Dies ist der sogenannte Hall-Effekt in seiner einfachsten Form. Schreibt man diese Gleichung noch durch $U = RI$ und unter Verwendung geometrischer Größen um, ergibt sich die anwendungsfreundlichere Form

$$U_H = R_H \frac{IB}{d} \quad (2.43)$$

$$R_H = \frac{1}{ne}, \quad (2.44)$$

wobei d die Dicke einer Probe ist, die entlang des angelegten Magnetfeldes ausgerichtet ist, und B ist die Umformulierung für $\mu_0 H$. Der Vorfaktor R_H ist der sogenannte Hall-Koeffizient und kann zur Bestimmung der Ladungsträgerkonzentration n eines Festkörpers verwendet werden. Hierbei sei angemerkt, dass diese Herleitung und Betrachtungsweise des Hall-Effektes lediglich von einer Sorte von Ladungsträgern e ausgeht. Liegt nur eine Art von Ladungsträgern (Löcher oder Elektronen) in einem Festkörper vor, kann das Vorzeichen von R_H Aufschluss über die jeweilige Sorte geben.

Für die Beschreibung des Magnetowiderstandes kann die Betrachtung des Zweibandmodells verwendet werden. In diesem Fall werden neben den Elektronen auch die Löcher als Ladungsträger zugelassen. Für das elektrische Feld aus Gl. (2.41) müssen die beiden unterschiedlichen Ladungsträger eine eigene Form erhalten

$$\mathbf{E} = \frac{1}{\sigma_1} \mathbf{J}_1 + \beta_1 \mathbf{H} \times \frac{1}{\sigma_1} \mathbf{J}_1 \quad (2.45)$$

$$\mathbf{E} = \frac{1}{\sigma_2} \mathbf{J}_2 + \beta_2 \mathbf{H} \times \frac{1}{\sigma_2} \mathbf{J}_2, \quad (2.46)$$

wobei $\sigma_{1,2}$ die Leitfähigkeit und $J_{1,2}$ der Strom der Art (1,2) an Ladungsträgern zugeschrieben werden und $\beta_{1,2} = \frac{e\tau_{1,2}}{m_{1,2}}$ die zugehörigen Koeffizienten des Hall-Terms darstellen. Schaut man sich nun den Gesamtstrom $\mathbf{J} = \mathbf{J}_1 + \mathbf{J}_2$ an und schreibt diese Summe in die allgemeine Form des elektrischen Feldes Gl. (2.41) um, so erhält man nach

Umformen

$$\begin{aligned} \mathbf{J} = & \left(\frac{\sigma_1}{1 + \beta_1^2 H^2} + \frac{\sigma_2}{1 + \beta_2^2 H^2} \right) \mathbf{E} \\ & - \left(\frac{\sigma_1 \beta_1}{1 + \beta_1^2 H^2} + \frac{\sigma_2 \beta_2}{1 + \beta_2^2 H^2} \right) \mathbf{H} \times \mathbf{E}. \end{aligned} \quad (2.47)$$

Aus der invertierten Form kann nun der erweiterte Hall-Koeffizient bestimmt werden:

$$R_H = \frac{\sigma_1^2 \beta_1 + \sigma_2^2 \beta_2}{(\sigma_1 + \sigma_2)^2}. \quad (2.48)$$

Dieser Koeffizient kann in erster Näherung dafür verwendet werden die Art der vorherrschenden Ladungsträger in einem Festkörper zu bestimmen. Mit zusätzlichen Informationen, wie der Ladungsträgerbeweglichkeit, kann auch hierbei eine genauere Untersuchung der jeweiligen Ladungsträgerkonzentrationen erfolgen, wie es vor allem zur Charakterisierung von Halbleitermaterialien erforderlich ist (vgl. Ref. [23]).

Für die eigentliche Betrachtung des Magnetowiderstandes können nun \mathbf{J} mit den Komponenten von \mathbf{E} entlang \mathbf{J} verglichen werden. Dafür wird das Skalarprodukt von \mathbf{J} und \mathbf{E} gebildet und durch den Betrag von \mathbf{J} geteilt:

$$\begin{aligned} \rho(H) &= (\mathbf{J} \cdot \mathbf{E}) / J^2 \\ &= \frac{\frac{\sigma_1}{1 + \beta_1^2 H^2} + \frac{\sigma_2}{1 + \beta_2^2 H^2}}{\left(\frac{\sigma_1}{1 + \beta_1^2 H^2} + \frac{\sigma_2}{1 + \beta_2^2 H^2} \right)^2 + \left(\frac{\sigma_1 \beta_1 H}{1 + \beta_1^2 H^2} + \frac{\sigma_2 \beta_2 H}{1 + \beta_2^2 H^2} \right)^2}. \end{aligned} \quad (2.49)$$

Für den Nullfeldwiderstand in dieser Betrachtungsweise gilt

$$\rho(H = 0) = \frac{1}{\sigma_1 + \sigma_2}. \quad (2.50)$$

Um den magnetfeldabhängigen spezifischen Widerstand mit dem Nullfeldwiderstand zu vergleichen, gibt es eine allgemein angewendete Definition des Magnetowiderstandes und durch Einsetzen von Gl. (2.49)

und Gl. (2.50) erhält man:

$$\frac{\Delta\rho}{\rho(H=0)} = \frac{\rho(H) - \rho(H=0)}{\rho(H=0)} \frac{\sigma_1\sigma_2(\beta_1 - \beta_2)^2 H^2}{(\sigma_1 + \sigma_2)^2 + H^2(\beta_1\sigma_1 + \beta_2\sigma_2)^2}. \quad (2.51)$$

Auf den ersten Blick scheint diese Gleichung ebenfalls sehr komplex zu sein. Allerdings lassen sich essentielle Aussagen direkt daraus ablesen. Für kleine Felder und einfache metallische Systeme, wie die obigen Annahmen voraussetzen, geht der Magnetowiderstand mit H^2 und sättigt zu höheren Feldern. Liegt nur eine Sorte von Ladungsträgern vor (Elektronen oder Löcher), so könnte angenommen werden, dass $\frac{\Delta\rho}{\rho(H=0)} = 0$ gilt, da $\beta_1 = \beta_2$ ist. Allerdings reicht allein die Tatsache, dass Ladungsträger ein unterschiedliches τ durch unterschiedliche Stoßprozesse oder eine unterschiedliche effektive Masse m^* besitzen, damit $\beta_1 \neq \beta_2$ ist. Das heißt im Umkehrschluss, dass diverse Streuzentren und eine Wechselwirkung mit dem Gitter, der Fermi-Fläche sowie eine Änderung der Ladungsträgerdichte unmittelbar Einfluss auf den Magnetowiderstand haben. Dadurch wird eine quantitative theoretische Vorhersage für bestimmte Systeme ausgesprochen schwierig. Darüber hinaus wird in dieser Betrachtung nur der sogenannte transversale Magnetowiderstand betrachtet, d.h., H steht senkrecht zu J . Die theoretische Betrachtung des longitudinalen Magnetowiderstandes ist deutlich komplexer und würde den Rahmen der hier behandelten theoretischen Grundlagen sprengen.

Zusammengefasst kann der Magnetowiderstand Aufschluss über die Kopplung zwischen magnetischen und elektrischen Eigenschaften eines Festkörpers liefern und stellt neben dem Hall-Effekt eine Standardcharakterisierungsmethode für metallische Proben da. Darüber hinaus bietet die Vermessung des Magnetowiderstandes in hohen extern angelegten Magnetfeldern die Möglichkeit den Einfluss von Spinfluktuationen auf die intrinsischen Eigenschaften des Festkörpers zu betrachten und ggf. schwierig zu identifizierende Phasenübergänge zu bestimmen. Eine genaue Beschreibung der Analyse am Beispiel NbFe₂ ist in Anhang B zu finden.

2.2. Experimentelle Grundlagen

Da im Rahmen dieser Arbeit die zuvor diskutierten Transportmechanismen an unterschiedlichen Systemen untersucht werden, sind im folgenden die grundlegenden Messprinzipien und experimentellen Umsetzungen erläutert, mit denen ein Großteil der Messungen durchgeführt wurden. Es soll insbesondere die Vermessung des spezifischen Widerstandes, des Magnetowiderstandes und des Hall-Effektes für Felder bis 9 T und Temperaturen zwischen 1.5 und 300 K beleuchtet werden. Grundsätzlich gehören diese Messmethoden zu den Standardcharakterisierungsmethoden in der Festkörperphysik. Da in dem von uns verwendeten Aufbau allerdings viele spezielle Anforderungen neben der Untersuchung konventioneller Bulk-Proben mit Abmessungen von einigen Kubikmillimetern, mikroskalige Proben bis in den μm -Bereich, sowie die Vermessung von nanostrukturierten Proben, gehören, konnte eine umfassende Infrastruktur generiert werden, die über die Standardanforderungen an die Messmethodik hinaus geht. Da, wie im späteren Verlauf der Arbeit deutlich wird, einige intrinsische Effekte der unterschiedlichen Systeme mit einem sehr kleinen Beitrag im Messsignal vorkommen können, ist es von elementarer Bedeutung, dass alle Messungen ein sehr kleines Signal-zu-Rausch-Verhältnis besitzen. Aus diesem Grund werden einige exemplarische Messungen an Indium gezeigt und diskutiert, um somit einen Eindruck davon zu vermitteln, welche Güte bezüglich des Rauschlevels die meisten Messungen besitzen.

Die entscheidende Größe für die Messung von Transporteffekten ist dabei der elektrische Widerstand. Wie bereits in den Physikalischen Grundlagen diskutiert, lässt sich hieraus der spezifische Widerstand und der Magnetowiderstand bestimmen. Dafür wird in konventionellen Messtechniken auf eine AC-Vier-Punkt-Messung zurückgegriffen. Diese Technik ist so populär, dass im Jahr 2015 sogar eine Ausarbeitung anlässlich zu „100 Jahren spezifischer Widerstand“ von Miccoli et al. veröffentlicht wurde [24]. Diese Veröffentlichung verdeutlicht auf eindrucksvolle Weise, wie aus den anfänglichen Bestrebungen geologische Erdschichten zu vermessen [25] eine interdisziplinäre Methode zur Charakterisierung in der Materialforschung bis in die Nanotechnologie und zu

niederdimensionalen Systemen geworden ist. Entscheidender Vorteil der Vier-Punkt-Messmethode ist die Tatsache, dass bei richtiger Anwendung kein Kontaktwiderstand bzw. Widerstand der Messelektronik das intrinsische Signal einer Probe verfälscht. Außerdem sorgt die Verwendung eines sich stets umpolenden Messstromes und dem gezielten Abgreifen der abfallenden Spannung an der Probe in der Messfrequenz dafür, dass thermische Offseteffekte in der Probe beseitigt werden. Außerdem sorgt diese Art von Lock-In-Technik für eine erhebliche Verbesserung des Signal-zu-Rausch-Verhältnisses, da Störfrequenzen im Signal herausgefiltert werden können. Diese Verbesserungen führen dazu, dass heutzutage Widerstände bis weit in den $n\Omega$ -Bereich gemessen werden, was für die Untersuchungen unterschiedlichster Quantenphänomene und Transportmechanismen von großer Bedeutung ist.

2.2.1. Infrastruktur zur Messung des elektrischen Transportes

Bulk-Proben im mm-Bereich

Bei einer makroskopischen Bulk-Probe mit einer Querschnittfläche von $\sim 1 \text{ mm}^2$ und einigen Millimeter Länge werden die elektrischen Kontakte in unserem Fall typischerweise mittels Silberleidlack/-epoxid realisiert (vgl. Abb. 2.7). Dafür wird die Probe auf einen Kupferprobenträger mittels GE-Varnish geklebt (vgl. Abb. 2.8). Dieser Probenträger wird für eine Messung an einen Probenspieß in einem Gasflusskryostaten installiert und soll durch seine gute Wärmeleitfähigkeit gewährleisten, dass die Probe im thermischen Gleichgewicht mit dem Probenraum ist. Dadurch besitzt die Probe die beim Kryostaten eingestellte Temperatur (festes T) bzw. angesteuerte Temperatur (T -Sweeps). Um eine elektrische Isolierung bei gleichzeitig guter Wärmeleitung zwischen Probenträger und Probe zu erhalten, wird in dünnflüssiges GE-Varnish getauchtes Zigarettenpapier zwischen Träger und Probe verwendet. Bei den Messdrähten für die elektrische Kontaktierung handelt es sich um Kupfer-/Manganinlackdraht. Der Durchmesser dieser Drähte ist dabei

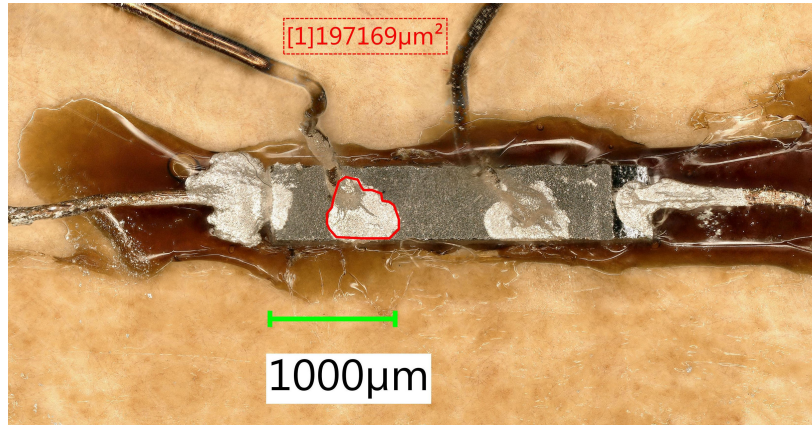


Abbildung 2.7.: Für Widerstandsmessungen kontaktierte Probe $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$ in Bulk-Form. Die Probe (grau) wurde mittels GE-Varnish auf den Probenträger geklebt und die vier Drähte mittels Silberleitlack in Vier-Punkt-Konfiguration an der Probenoberfläche befestigt. Durchschnittliche Kontaktflächen des Silberleitlackes betragen 1 bis 0.2 mm^2 (rote Umrandung). Für die Messdrähte wurde Kupferlackdraht mit $100 \text{ }\mu\text{m}$ Durchmesser verwendet.

an die jeweiligen Anforderungen bezüglich der Probengröße angepasst und variiert zwischen 80 und $100 \text{ }\mu\text{m}$. Bei den anschließenden Messleitungen wurde darauf geachtet, dass alle Drahtpaare verdreht und geschirmt bis zum Messinstrument verlaufen. Dadurch werden zusätzlich Induktionseffekte der Drähte, kapazitive Effekte und Störsignale von außen minimiert. Die eigentliche Messung des Widerstandes geschieht in unserem Fall durch eine „LR700“ AC-Widerstandsmessbrücke der Firma LINEAR RESEARCH INC. (im Folgenden durch LR700 abgekürzt). Eine umfangreiche Charakterisierung des Messsignals und der Auflösung der LR700 in unserer Messumgebung ist in Anhang A zu finden.

Für den spezifischen Widerstand ρ ist es notwendig den Geometrie-vorfaktor aus dem gemessenen Widerstandssignal R herauszurechnen. In einfacher Bulk-Quadergeometrie, bei dem die Stromkontakte an den Spitzen und die Spannungskontakte an einer Oberfläche entlang der langen Achse befestigt werden, gilt für den spezifischen Widerstand mit Geometrie-vorfaktor

$$R = \frac{L}{a \cdot b} \cdot \rho. \quad (2.52)$$

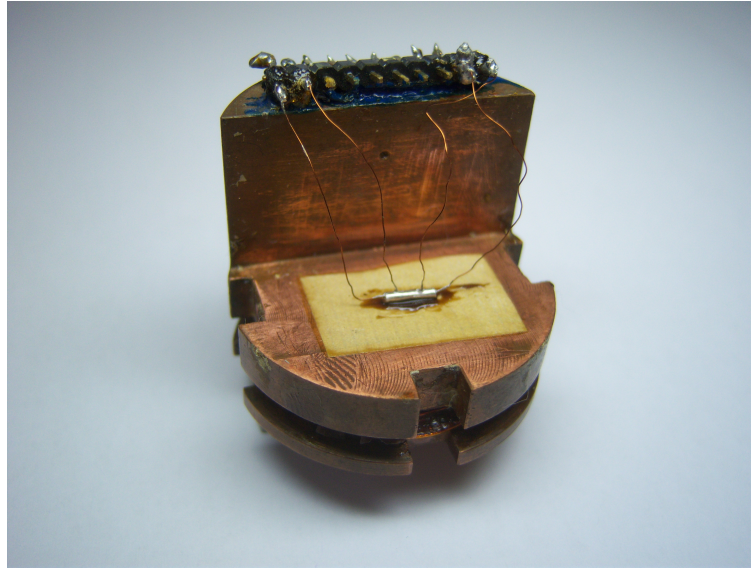


Abbildung 2.8.: Kupferprobenträger für elektrische Transportmessungen mit kontaktierter Indiumprobe. In einem Kryostaten installiert, dient der Träger als Probenumgebung und gewährleistet die thermische Kopplung zwischen Probe und Thermometer.

Hierbei sind a und b die Kantenlänge der Probenquerschnittfläche und L ist der effektive Abstand zwischen den beiden Spannungskontakten (vgl. Abb. 2.9). Die Maße für den Geometriefaktor lassen sich in der Regel abschätzen. Doch für einen genaueren Absolutwert des spezifischen Widerstandes können a und b durch die Vermessung mit einem Digitalmikroskop bestimmt werden. Da die Kontaktflächen des Silberleitlackes für die Spannungskontakte vergleichsweise unspezifisch sind und man den Ort des Spannungsabgriffes nicht bestimmen kann, befestigt man die Stromkontakte und einen Spannungskontakt wie oben beschrieben an der Probenoberfläche und hält den zweiten Spannungskontakt durch eine an einer Mikrometerschraube befestigte Rasierklinge flexibel (vgl. Abb. 2.9 rechts). Dadurch kann die L -Abhängigkeit des gemessenen Widerstandes einer Bulk-Probe ermittelt werden, und es ist somit möglich das L der eigentlichen Messung zu bestimmen. Ein weiterer Vorteil dieser Charakterisierungsmethode ist, dass durch eventuelle Sprünge in der L -Abhängigkeit des Widerstandes auf Phasenbildung, Korngrenzen, Risse und großvolumige Verunreinigungen im Bulk-Material zurückgeschlossen

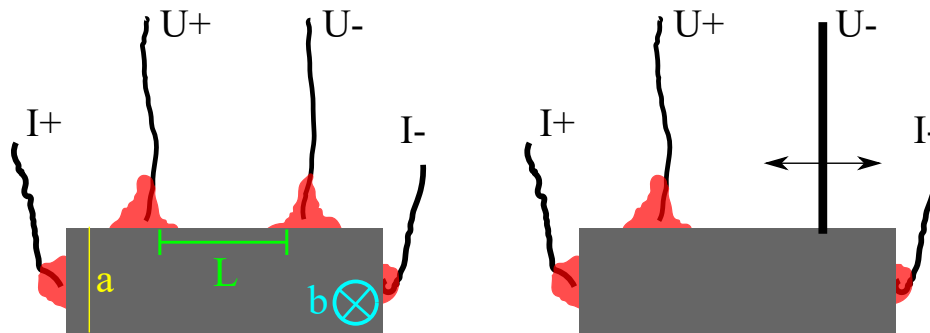


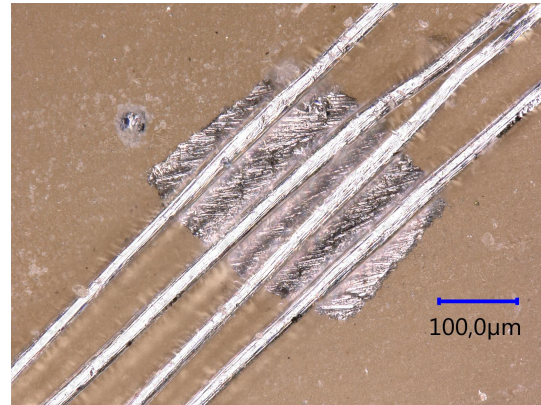
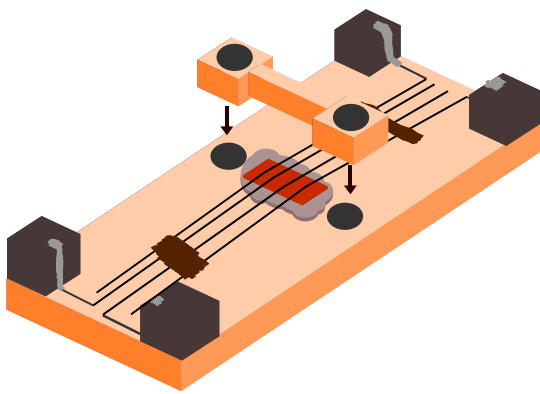
Abbildung 2.9.: Schema der Kontaktierung für Widerstandsmessungen (links) und experimentelle Bestimmung der L -Abhängigkeit des Widerstandes (rechts).

werden kann.

Diese Methode der Probenkontaktierung wird in vielen Laboren verwendet, stößt aber an ihre Grenzen, wenn die Probengröße in den Submillimeterbereich geht. Grundvoraussetzung für eine Vier-Punkt-Konfiguration ist, dass sich die Kontaktstellen an der Probenoberfläche nicht berühren und so ggf. einen Kurzschluss verursachen. Es muss dennoch gewährleistet werden, dass die Messdrähte an definierter Stelle einen leitfähigen Kontakt mit der Probenoberfläche bilden.

Bulk-Proben im Sub-mm-Bereich

Daher ist es für sehr kleine Proben notwendig einen mechanischen und elektrischen Kontakt zwischen Messdrähten und Probe zu generieren, die neben der oben beschriebenen Kontaktierungsmethode realisiert werden können. Beispielfhaft seien hier die Möglichkeit des Bondens oder Lötens oder das mechanische Pressen von Kontaktflächen auf die Probenoberfläche erwähnt. Die Umsetzung einer elektrischen Kontaktierung durch Bonden oder Lötens hängt stark von der Zusammensetzung des Probenmaterials und dessen Oberflächenmorphologie ab. Bei Proben mit unebener Beschaffenheit ist es in der Regel nicht ohne weiteres möglich mit herkömmlichen Bond-Verfahren stabile Kontakte zu erzeugen.



(a) Schematische Zeichnung des Probenhalters zum Kontaktieren einer Vier-Punkt-Konfiguration zum Messen des spezifischen Widerstandes von kleinen Proben

(b) Bild von einer Probe (ein Stück Vanadium), die mit dem Probenhalter kontaktiert wurde.

Abbildung 2.10.: Visuelle Darstellung des Messsetups (Schematische Zeichnung des Probenhalters und Bild einer kontaktierten Probe); aus Ref. [27] entnommen.

Dagegen ist die Kontaktierung mittels Silberepoxid/-Leitlack durch die Probengröße limitiert, denn typische Größen für einen mit Silberepoxid/-Leitlack erzeugten Kontakt sind in der Größenordnung von einem Millimeter Durchmesser (vgl. Abb. 2.7). Unter diesem Umstand ist es nicht möglich vier Drähte an einer Probe mit solchen Größen via Silberepoxid/-Leitlack zu befestigen, ohne dass erzeugte Kontaktflächen einen Kurzschluss erzeugen. In den letzten Jahren kommt vermehrt die Kontaktierung mittels kommerziell erhältlichen Mikromesssonden zum Einsatz. Diese Miniaturmessfühler erlauben eine Vier-Punkt-Widerstandsmessung im sub-Millimeter-Bereich durch mechanisches Kontaktieren. Messungen können allerdings mit dieser Technik nur in einem limitierten Temperaturbereich durchgeführt werden [26]. Vor diesem Hintergrund haben wir einen einfachen und günstigen Probenhalter für eine temperaturabhängige Messung des spezifischen Widerstandes entwickelt, welcher in den Grundzügen auf den Erfahrungen von Hochdruckmessungen basiert [28]. Der Probenhalter erweitert die Standardmethoden für eine Messung des spezifischen Widerstandes in Vier-Punkt-Konfiguration

für Proben mit einer Länge bis hinunter auf ca. 100 μm (vgl. Abb. 2.10). Die Präparation und Umsetzung dieser Methode ist im Rahmen der Untersuchung von MnB_4 durchgeführt worden.

Um die Probe mechanisch händeln zu können, wurde sie in elektrisch isolierendes Epoxidharz eingebettet. Dies erlaubt zusätzlich ein genaues Positionieren an einem definierten Ort auf dem Probenhalter. Damit die Probe elektrisch kontaktiert werden kann, wurde die Proben/Epoxidharz-Einheit von einer Seite solange abgeschliffen, bis die Probe freigelegt wurde (vgl. Abb. 2.10b für die Ansicht einer freigelegten Probenoberfläche, in diesem Fall von einem Stück Vanadium). Nach dem Fixieren der Proben/Epoxidharz-Einheit auf einem elektrisch isolierten Kupferhalter, werden ähnlich einer Gitarre vier Platindrähte mit jeweils 25 μm Durchmesser über die freigelegte Probenoberfläche gespannt (vgl. Abb. 2.10b). Um letztendlich einen elektrischen Kontakt zu gewährleisten, werden die Drähte anschließend noch mit einem Stempel auf die Probenoberfläche gedrückt. Dadurch wird ebenfalls verhindert, dass die Drähte sich bewegen können. Die Funktionalität dieses Setups wurde durch verschiedene metallische Proben getestet (Cu, V, Nb). Alles in allem kann mit diesem Setup eine Messung des spezifischen Widerstandes in Vier-Punkt-Konfiguration für sehr kleine Probengrößen - im Fall von MnB_4 150 μm - und für Temperaturen in unserem Kryostatensystem von 1.5 bis 300 K umgesetzt werden.

Als nächstes wurde der Probenhalter an einem Kryostateneinsatz für ein ^4He Badkryostaten installiert, wobei die Platindrähte zusätzlich mit der Messinfrastruktur für den spezifische Widerstand des Kryostateneinsatzes verbunden wurden. Mit diesem Aufbau wurde nun der spezifische Widerstand von unterschiedlichen einkristallinem MnB_4 -Proben in einem Temperaturbereich zwischen 4.2 und 200 K vermessen. Durch das Einbetten der Kristalle in Epoxidharz ist eine Orientierung entlang einer Kristallachse erschwert, wodurch nicht garantiert werden kann entlang welcher kristallographischen Achse der spezifische Widerstand gemessen wurde.

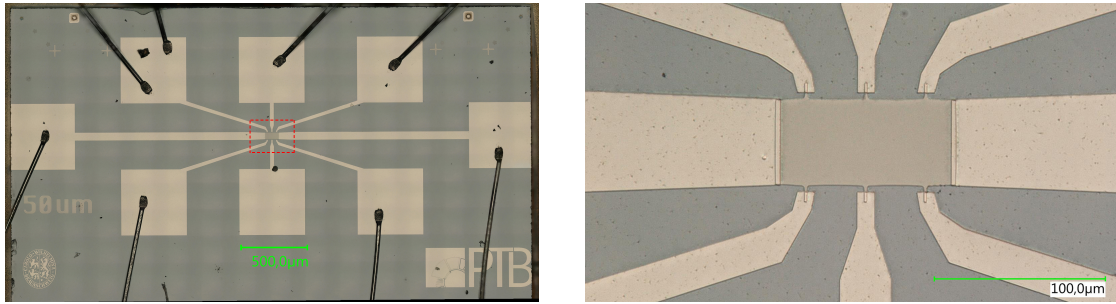
Mit den variierenden Formen der MnB_4 -Kristalle und der Tatsache, dass beim Abschleifen und Freilegen der Proben ein gewisser Teil des

Probenmaterials mit abgetragen wird, wurde die Unsicherheit bezüglich des Geometriefaktors des spezifischen Widerstandes abgeschätzt. Für die Dimensionierung des Fehlers und zur Abschätzung der Abstände der Spannungskontakte wird deren Durchmesser von $25\text{ }\mu\text{m}$ und die Positionierung auf der Probenoberfläche verwendet (vgl. Abb. 2.10). Mit der Unsicherheit des Geometriefaktors und der Ungenauigkeit bei der Positionierung der Kontaktabstände wurde der allgemeine Fehler der Absolutwerte für den spezifischen Widerstand zu 25% bestimmt. Dabei ist die relative Genauigkeit, die durch elektrische Ungenauigkeit des Messsetups beeinflusst wird, auf unter 1% bestimmt. Die Ergebnisse und Diskussion der Messungen an MnB_4 sind in Abschnitt 3 zu finden.

Nanostrukturierte Dünnfilm-Proben

Im Rahmen dieser Arbeit wurden neben Bulk-Proben im Millimeterbereich (MnSi , NbFe_2 , UPt_2Si_2 und $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$) und Submillimeterbereich (MnB_4) auch nanostrukturierte MnSi Dünnfilmproben untersucht. Aus diesem Grund wird nun auf die Präparation und Besonderheiten der Kontaktierung derartiger Proben eingegangen. Dabei soll der Fokus auf der Messinfrastruktur für den spezifischen Widerstand und Magnetowiderstand gelegt werden. Auf eine Beschreibung der Synthese der MnSi Filme wird verzichtet und auf die Probensynthese in Ref. [29] verwiesen.

Die mittels Molekularstrahlepitaxie hergestellten Filme auf Si 111 Substrat wurden im Rahmen einer Kooperation an der PTB Braunschweig im Reinraumzentrum durch Elektronenstrahlolithographie strukturiert. Als Probenstruktur wurde eine sogenannte Hall-Struktur mit bis zu sechs Spannungsabgriffen gewählt, wobei sich jeweils drei auf einer Seite der Hall-Struktur befinden (siehe Abb. 2.11b). Der Probenstrom wird dabei in der Regel an den beiden äußeren Kontakten der Struktur angelegt, sodass der spezifische Widerstand bzw. der Magnetowiderstand entlang der Hall-Struktur an definierter Stelle gemessen werden kann. Für die in dieser Arbeit beschriebenen Magnetowiderstandsmessungen in hohen Magnetfeldern wurde auf diese Weise ein 10 und ein 30 nm



- (a) Oberer Teil des Probenchips mit einer MnSi-Struktur und dazugehörigen Kontaktpads. Zusätzlich sind die Aluminiumbonddrähte zu erkennen.
- (b) Hall-Struktur der MnSi-Nanostruktur mit sechs Abgriffen für die Spannung (jeweils drei oben und unten) und zwei Kontakten zum Anlegen des Probenstromes (recht und links).

Abbildung 2.11.: Nanostrukturierte MnSi-Dünnschichtprobe mit einer Filmdicke von 30 nm und einer Breite von 50 μm .

dicker MnSi-Film strukturiert. Somit ergeben sich in Bulk-Analogie Proben mit 10 nm x 50 μm und 30 nm x 50 μm Querschnittsfläche. Alle Messungen wurden zwischen den äußersten Spannungskontakten durchgeführt, was bei beiden Proben ein L von 70 μm bedeutet. Aus den Filmen wurden jeweils zwei dieser Strukturen hergestellt, um einen Ersatz für eventuelle Beschädigung der Struktur zu haben. Die Spannungs- und Stromkontakte werden zu größeren Kontaktflächen aus Platin mit einer Titanschicht als Haftvermittler weiter geführt (siehe Abb. 2.11a). Um die Proben zuordnen zu können, wurden die Chips ebenfalls mittels lithografiertem Gold mit der Aufschrift „50 μm “ versehen, was für die Breite der Hall-Struktur steht. Die so bearbeiteten Probenchips mit jeweils zwei Strukturen sind 4 x 4 mm groß und wurden in einen Chipcarrier mit GE-Varnish für die thermische Ankopplung und Fixierung geklebt (siehe Abb. 2.12). Anschließend konnte ein elektrischer Kontakt zwischen Chipcarrier und Probenchip durch Wedge-Bonden mit 30 μm Aluminiumdrähten hergestellt werden. Diese mehrfache Weiterführung der Messleitungen ist notwendig, damit die empfindliche Probe und die Bondkontakte weitestgehend geschützt sind. Die Kontaktpads auf den Probenchips sind mit 500 x 500 μm so groß gewählt, dass

ein eventuelles Nachkontaktieren per Hand und Silberleitlack möglich ist, falls die Bondkontakte während des Handlings oder während eines Transportes beschädigt werden. An die Chipcarrier wurden abschließend weiterführende verdrehte Messdrähte (100 μm Kupferlackdraht) gelötet, so dass eine Implementierung in unterschiedliche Messsetups möglich ist, ohne zu nah an den eigentlichen Proben oder den Bonddrähten zu arbeiten. Durch diese Vorbereitung konnten die Proben sowohl auf den oben beschriebenen Probenträger in unserem Labor, also auch auf der Probenaufnahme des ^4He -Durchflussskryostaten in Grenoble für die Hochfeldmessungen, vermessen werden. Dafür musste der Chipcarrier lediglich mit GE-Varnish oder Wärmeleitpaste aufgeklebt und die Enden der Kupferlackdrähte an die jeweilige elektronische Messaufnahme gelötet werden. Für den Geometriefaktor zur Bestimmung des spezifischen Widerstandes wurden die oben erwähnten Abmaße verwendet.



Abbildung 2.12.: Chipcarrier mit eingeklebtem MnSi-Probenchip. Die Strukturen sind mittels Wedge-Bonden mit dem Carrier kontaktiert. An der Ober- und Unterseite des Chipcarriers wurden verdrehte Kupferlackdrähte für die Verbindung mit bestehender Messinfrastruktur gelötet.

3. MnB_4

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein Messaufbau entwickelt und charakterisiert, um den spezifischen Widerstand von sehr kleinen Proben ($100\text{ }\mu\text{m}$ - 1 mm) zu vermessen. Zwar gibt es etablierte Verfahren, die in Kombination mit STM-Technik deutlich kleinere Proben vermessen können (vgl. Ref. [24]), allerdings ist der Zugang zu solchen Messsetups beschränkt und nur mit erheblichen Aufwand in Kryostatentechnik zu implementieren. Der Fokus lag also auf die verhältnismäßig einfache Umsetzbarkeit der Probenkontaktierung und das Proben-Handling an sich. Nach einer grundlegenden Charakterisierung konnte der Aufbau erfolgreich an MnB_4 angewendet und dessen temperaturabhängiger spezifischer Widerstand vermessen werden.

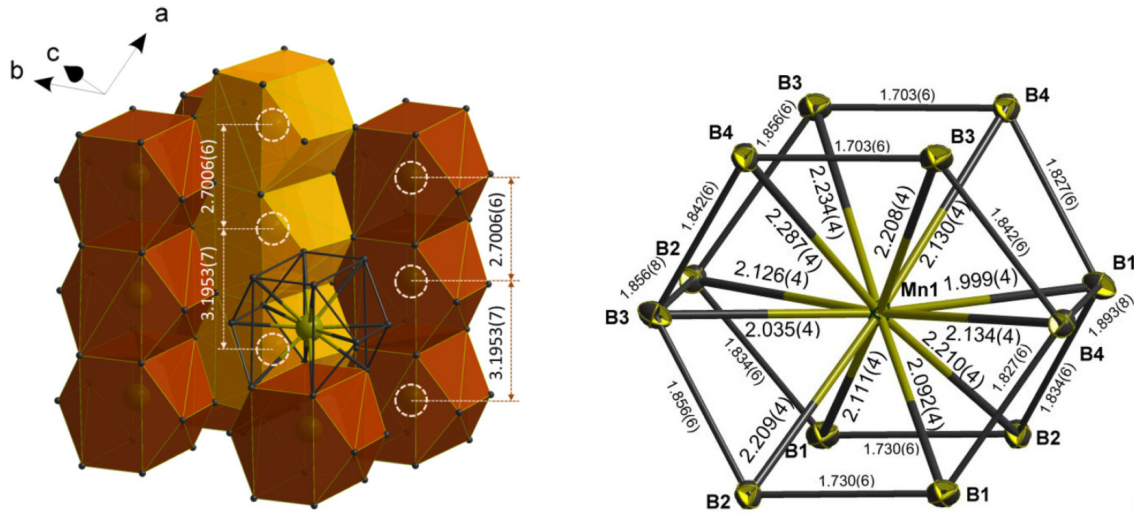
3.1. Einführung

In den letzten Jahrzehnten rückte die Untersuchung von Bor-Verbindungen im Bereich der Chemie und Physik zunehmend in den Fokus [30,31]. Die Eigenschaft von Bor in Festkörpern komplexe kristallographische Strukturen zu bilden sorgt in Verbindung mit anderen Elementen für außergewöhnliche strukturelle, elektronische und magnetische Eigenschaften. Diese Eigenschaften reichen von extremer Härte bei FeB_4 [32], Supraleitung mit hoher Übergangstemperatur (bis zu 39 K) bei MgB_2 [33], unkonventionelle ferromagnetische und antiferroquadrupolare Ordnung in Systemen wie EuB_6 und CeB_6 [34,35] bis hin zu ungewöhnlichen Oberflächenzuständen im Kondo-Isolator SmB_6 [36].

Das in dieser Arbeit untersuchte MnB_4 ist das erste Mal 1960 in polykristalliner Form synthetisiert wurden [37]. Doch erst durch das Bestreben immer härtere Materialien zu synthetisieren und die Ursache dieser Härte zu ergründen rückten MnB_4 und weitere Boridsysteme in den Fokus aktueller Forschung [38–48]. In diesen Studien wurde für MnB_4 herausgearbeitet, dass die strukturellen Eigenschaften eng mit den elektronischen Eigenschaften verknüpft sind. Aus diesem Grund wurde auf theoretischer Seite durch DFT-Berechnungen (Dichtefunktionaltheorie) nach einer Kopplung zwischen der elektronischen und kristallographischen Struktur gesucht [42–48].

Bei der experimentellen Überprüfung der unterschiedlichen Ergebnisse bei der theoretischen Berechnung kam es zu widersprüchlichen Ergebnissen der einzelnen Messmethoden von Gou et al. aus Ref. [43] und Knappschneider et al. aus Ref. [42]. Diese Widersprüche werden nun im Folgenden genauer beleuchtet und sollen gleichzeitig einen Überblick über die strukturellen und thermodynamischen Materialeigenschaften von MnB_4 geben. Dabei ist anzumerken, dass in diesen Arbeiten die Messungen an polykristallinen von Gou et al. und die Messungen an einkristallinen Proben von Knappschneider et al. vorgenommen und diskutiert wurden.

Die monokline Kristallstruktur von MnB_4 wurde durch Röntgendiffraktion bestimmt und ist in Abb. 3.1 dargestellt. Die Gitterparameter sind $a = 5.5029(3)$, $b = 5.3669(3)$, $c = 2.9487(2)$ Å, $\beta = 122.710(5)^\circ$ [49, 50]. Die Mangan-Atome sind hierbei von einem Polyeder aus 12 Bor-Atomen umgeben (vgl. Abb. 3.1b). Diese Polyeder bilden eine Kette entlang der c -Achse (vgl. Abb. 3.1a). Um eine theoretische Grundlage für die Eigenschaften von MnB_4 zu schaffen, wurden die Zustandsdichten für monoklines MnB_4 , und zum Vergleich von orthorhombischen FeB_4 mit lokaler Dichtenäherung (LDA) berechnet (vgl. Abb. 3.2) [51, 52]. Diese Zustandsdichten zeigen erste Anhaltspunkte für elektronische Strukturen, die für ein modellhaftes Verständnis der Transporteigenschaften benötigt werden. Durch die monokline Kristallstruktur von MnB_4 ist der Winkel β ungleich 90° und die Mangan-Atome haben einen alternierenden Abstand von $2.7006(6)$ und $3.1953(7)$ Å entlang der Polyederketten. In der Zustandsdichte erzeugt diese monokline Verzerrung eine Lücke



(a) Die Mangan-Atome sind von Polyedern aus 12 Bor-Atomen umgeben, die eine Kette entlang der c -Achse bilden, hier mit eingezeichneten Mn-Mn-Abständen.

(b) Gitterstruktur eines Bor-Polyeders mit eingezeichneten Gitterabständen in Ångström.

Abbildung 3.1.: Die monokline Kristallstruktur von MnB_4 ; aus Ref. [43] entnommen.

bei der Fermi-Energie (vgl. Abb. 3.2 unten). Ähnliche Berechnungen der Zustandsdichte in Ref. [42] befassen sich mit der leicht abweichenden Fragestellung, ob es durch die alternierenden Abstände der Mn-Mn-Bindungen zur elektronischen Dimerisation innerhalb des MnB_4 kommt. Dafür wurden die jeweiligen Zustandsdichten für den dimerisierten und undimerisierten Fall berechnet (vgl. Abb. 3.3). Außerdem wurde von Knappschneider et al. [42] der Widerstand von einkristallinem MnB_4 in einem Temperaturbereich von 300 K bis 360 K gemessen. Diese Messungen des Widerstandes und die Darstellung in einem Arrheniusplot ergaben, dass es sich bei einkristallinem MnB_4 um einen Halbleiter mit einer sehr kleinen Bandlücke von 0.04 eV handelt. Dieses steht im Widerspruch zur Bandstrukturechnung für den undimerisierten Fall. Dies lässt die Schlussfolgerung zu, dass eine Dimerisierung in MnB_4 vorliegt, die die Bandstruktur kontrolliert und die Bandlücke erzeugt.

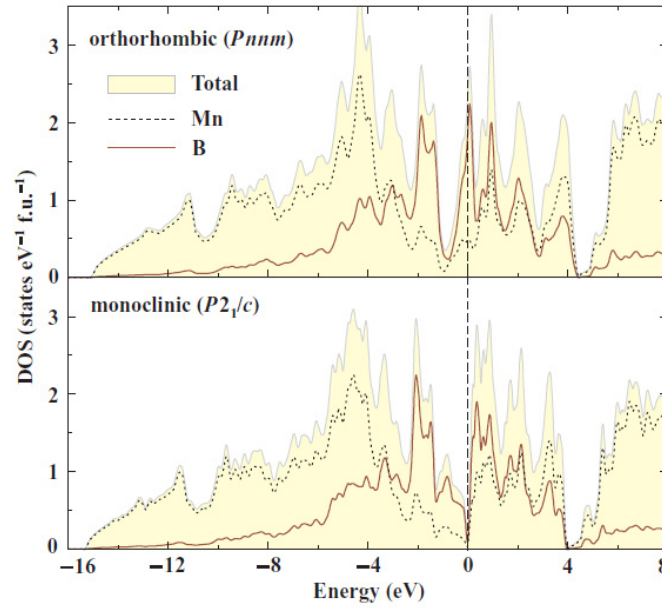


Abbildung 3.2.: Berechnete elektronische Zustandsdichten von MnB_4 (unten) und MnB_4 mit einer angenommenen FeB_4 -Struktur (oben). Die Verzerrung von der orthorhombischen in die monokline Struktur erzeugt eine Lücke in der Zustandsdichte bei der Fermi-Energie $\epsilon_F = 0$ eV; aus Ref. [43] entnommen.

Für die Charakterisierung der magnetischen Eigenschaften von MnB_4 wurden in Ref. [43] für zwei polykristalline Proben jeweils Hysteresekurven bei 2 K aufgenommen und die Suszeptibilität für den Temperaturbereich von tiefen Temperaturen bis 400 K gemessen (vgl. Abb. 3.4 und Abb. 3.5). Bei tiefen Temperaturen zeigt MnB_4 einen schwachen ferromagnetischen Charakter, welches bei höheren Temperaturen von ca. 150 bis 200 K in ein klassisches paramagnetisches Curie-Weiss-Verhalten übergeht. Das effektive magnetische Moment in der paramagnetischen Phase wurde aus der Suszeptibilität zu 1.6 bis 1.7 μ_B pro Mangan-Atom bestimmt, die Curie-Temperatur Θ ist ~ 90 K. Die Messungen zeigen außerdem, dass bei tiefen Temperaturen starke Unterschiede im Verlauf der Suszeptibilität zwischen den unterschiedlichen Proben bestehen. Eine derartige starke Probenabhängigkeit der magnetischen Eigenschaften lässt auf ein extrinsisches statt intrinsisches Verhalten schließen.

Im Gegensatz zu den Messungen der Suszeptibilität an polykristallinen

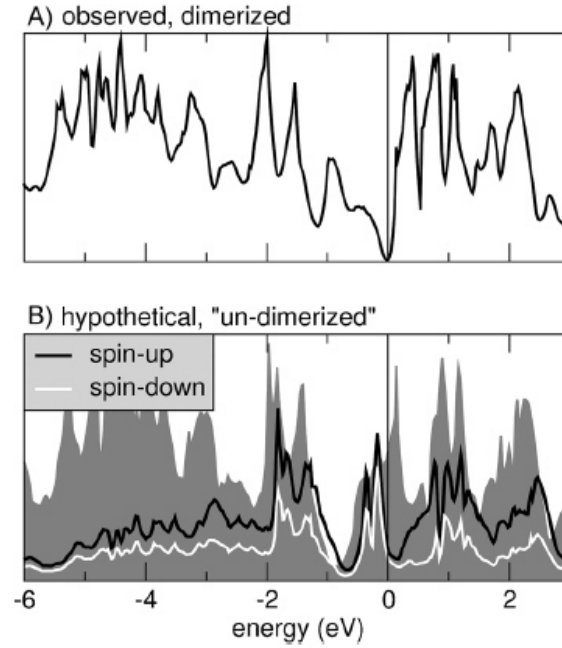


Abbildung 3.3.: Berechnete elektronische Zustandsdichten von MnB_4 für den dimerisierten (oben) und undimerisierten Fall (unten). Die Lücke in der Zustandsdichte in der dimerisierten Betrachtung sind mit der Messung des Widerstandes in einem Temperaturbereich von 300 K bis 360 K konsistent; aus [42] entnommen.

Proben konnte die Gruppe um Knappschneider et al. an einkristallinen Proben keine magnetische Ordnung nachweisen und die Curie-Temperatur Θ wurde zu 0 bestimmt [42].

Die spezifische Wärmekapazität C_P von polykristallinem MnB_4 ist dominant phononischer Natur (vgl. Abb. 3.6). Die Beobachtung eines elektronischen Anteils in der spezifischen Wärme suggeriert zudem ein metallisches Verhalten. Dabei wurden die Koeffizienten in

$$C_P(T) = \gamma T + \beta T^3$$

zu $\gamma = 10.1 \text{ mJmol}^{-1}\text{K}^{-2}$ und $\beta = 0.012 \text{ mJmol}^{-1}\text{K}^{-4}$ bestimmt. Der metallische Charakter in der spezifischen Wärme von polykristallinem MnB_4 steht im Widerspruch zu den Widerstandsmessungen an Einkristallen von der Gruppe um Knappschneider et al., die ein halbleitendes

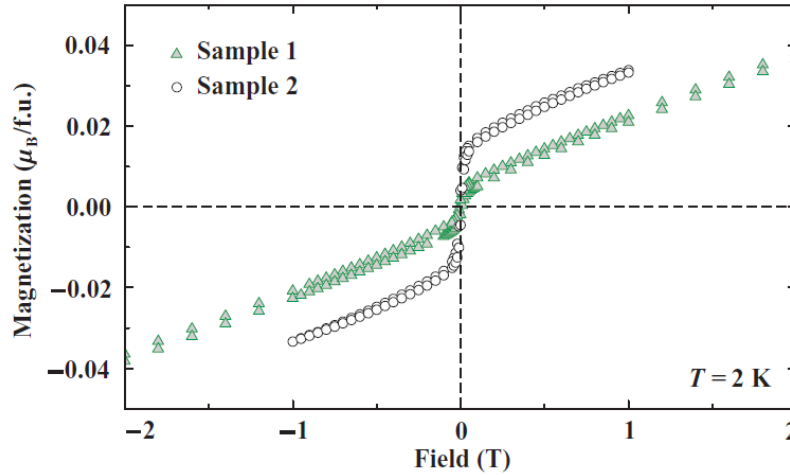


Abbildung 3.4.: Magnetisierung von zwei polykristallinen MnB_4 -Proben bei einer Temperatur von 2 K. Die schwache Remanenz und das schwache Sättigungsmoment von $\approx 0.015 \mu_B$ lässt auf eine schwache ferromagnetische Ordnung schließen. Die unterschiedliche Ausprägung der Hysteresekurven zeigt die starke Probenabhängigkeit; aus Ref. [43] entnommen.

Verhalten mit kleiner Bandlücke beobachteten [43]. Zusammengefasst: In Ref. [43] wurde bei polykristallinen MnB_4 ein ferromagnetisches Verhalten (basierend auf der Suszeptibilität) und ein metallischer Grundzustand (basierend auf der spezifischen Wärme) gemessen. Dem gegenüber stehen die Messungen von Knappschneider et al. [42] an einkristallinen MnB_4 -Proben. Im Kontext einer Peierls-Verzerrung sollte nach Knappschneider et al. [42] MnB_4 als nicht-magnetischer Halbleiter mit kleinem Gap bzw. als Pseudo-Gap-System vorliegen. Der Unterschied zwischen polykristallinen und einkristallinen Proben wirft die Frage nach der Probenqualität und nach dem magnetischen und elektronischen Grundzustand von MnB_4 auf. Dieses Szenario mündet in aktuelle Bandstrukturberechnungen, in denen ein komplexes Zusammenspiel zwischen den sogenannten „Peierls- und Stonermechanismen“ untersucht werden [46, 48].

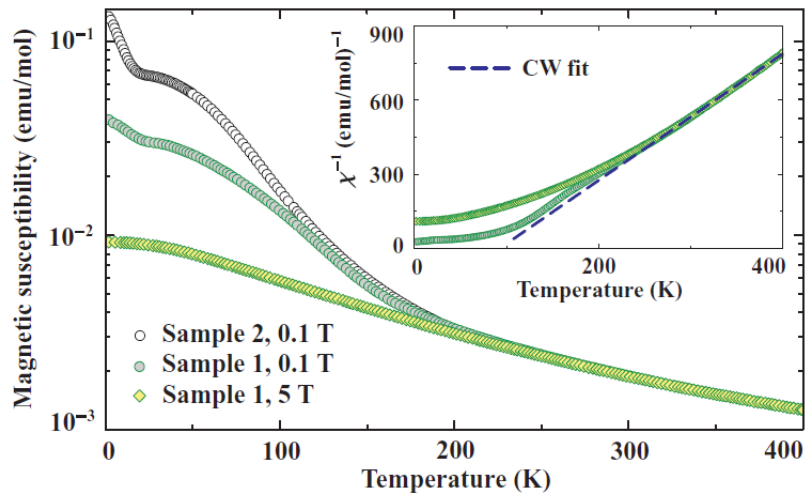


Abbildung 3.5.: Suszeptibilität von zwei polykristallinen MnB_4 -Proben. Bei höheren Temperaturen geht die Suszeptibilität von MnB_4 in ein paramagnetisches Curie-Weiß-Verhalten über (vgl. Inset). Auch in dieser Messgröße sieht man bei tiefen Temperaturen die starke Probenabhängigkeit; aus Ref. [43] entnommen.

3.2. Experimentelle Umsetzung

Die bei der Synthese von einkristallinem MnB_4 entstehenden Kristalle sind sehr klein (einige $100 \mu\text{m}$), wodurch auf experimenteller Seite das Handling und die Vermessung durch Standardcharakterisierungsmethoden wie dem temperaturabhängigen spezifischen Widerstand erschwert werden. Die in der Arbeit untersuchten Proben wurden nach dem Rezept aus Ref. [42] von Knappschneider et al. synthetisiert und sind in Abb. 3.7 dargestellt. Aufgrund der geringen Größe konnte von der AG Albert an den Einkristallen lediglich ein zwei-Punkt-Widerstand in einem Temperaturbereich zwischen 300 und 360 K durchgeführt werden [42]. Um vor diesem Hintergrund eine genauere Aussage über den elektronischen Grundzustand von MnB_4 machen zu können, soll im Rahmen dieser Arbeit eine AC-Vier-Punkt-Widerstandsmessung in einem größeren Temperaturbereich bis zu tiefen Temperaturen durchgeführt werden. Mit diesen Messungen lässt sich dann unmittelbar rückschließen, ob

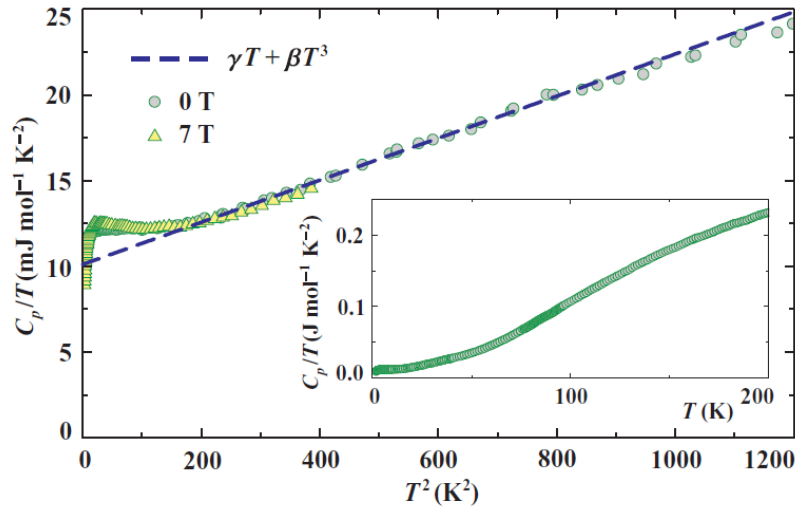


Abbildung 3.6.: Spezifische Wärmekapazität von polykristallinem MnB_4 ; aus Ref. [43] entnommen.

der Grundzustand von MnB_4 metallisch oder nicht-metallisch ist. Aus diesem Grund wurde ein Setup entwickelt, mit dem sich der AC-Vier-Punkt-Widerstand bei Probengrößen bis runter zu $\sim 100 \mu\text{m}$ messen lässt und welches auf MnB_4 angewendet wurde (siehe Abschnitt 2.2.1 „Bulk-Proben im Sub-mm-Bereich“). Ferner haben wir die Magnetisierung von einkristallinem MnB_4 in einem konventionellen SQUID-Magnetometers gemessen, um etwaiges ferromagnetisches Verhalten im Grundzustand zu untersuchen.

3.3. Ergebnisse und Diskussion

In Abb. 3.8 ist der spezifische Widerstand als Funktion der Temperatur von zwei einkristallinen MnB_4 -Proben aufgetragen. Qualitativ zeigen beide Proben ein ähnliches Verhalten, wobei die Temperaturabhängigkeit inkonsistent mit einem metallischem Charakter ist. Im Detail sieht man mehrere Unterschiede zwischen den beiden Messungen. An erster Stelle und am signifikantesten ist der Unterschied zwischen den Absolutwerten beider Messungen um einen Faktor von 2.5. Dieser ist größer als der

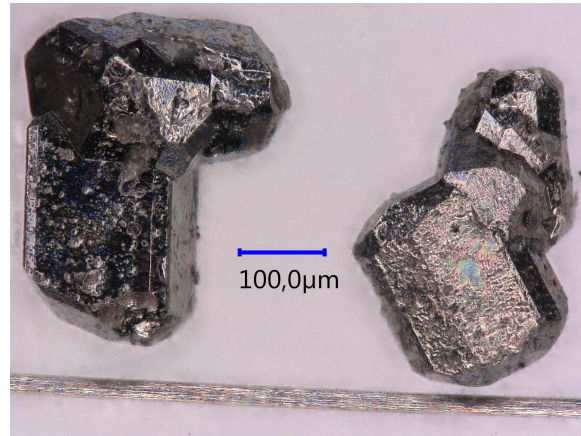


Abbildung 3.7.: Zwei MnB_4 -Einkristalle, die nach dem Rezept aus Ref. [42] synthetisiert wurden, repräsentativ für die in dieser Arbeit verwendeten Proben. Um einen Größenvergleich zu geben ist am unteren Rand des Bildes ein Platindraht mit $25\text{ }\mu\text{m}$ Durchmesser abgebildet, der im weiteren Verlauf auch für die Kontaktierung verwendet wird; aus Ref. [27] entnommen.

oben beschriebene, messaufbaubedingte Fehler und spiegelt die starke Probenabhängigkeit im spezifischen Widerstand wieder. Unter Berücksichtigung der Unterschiede in den Absolutwerten zeigt sich bei einem Vergleich mit den Zwei-Punkt Messungen des spezifischen Widerstandes von Knappschneider et al. [42], dass der absolute spezifische Widerstand in die selbe Größenordnung wie bei den vorangegangenen Messungen fällt und somit konsistent ist. Mit anderen Worten, für den spezifischen Widerstand (bzw. der spezifischen Leitfähigkeit) erhalten wir Werte in der Größenordnung von einigen zehn $\text{m}\Omega\text{cm}$ (einigen hundert $S\text{ m}^{-1}$), im Verlauf steigend (sinkend) zu niedriger werdenden Temperaturen. Der experimentell bestimmte spezifische Widerstand reflektiert kein archetypisches halbleitendes Verhalten. Wenn wir annehmen, bei einkristallinem MnB_4 handelt es sich um ein konventionell halbleitendes System, würde eine Auftragung über einen Arrhenius-Plot die zugehörigen Bandlückenenergien liefern. Aus diesem Grund haben wir in Abb. 3.8 den Arrhenius-Plot für die Probe mit kleineren Absolutwerten des spezifischen Widerstandes ($\sim 10\text{ m}\Omega\text{cm}$) dargestellt, um das obere und untere Limit für die Bandlückenenergie bei höchster und niedrigster

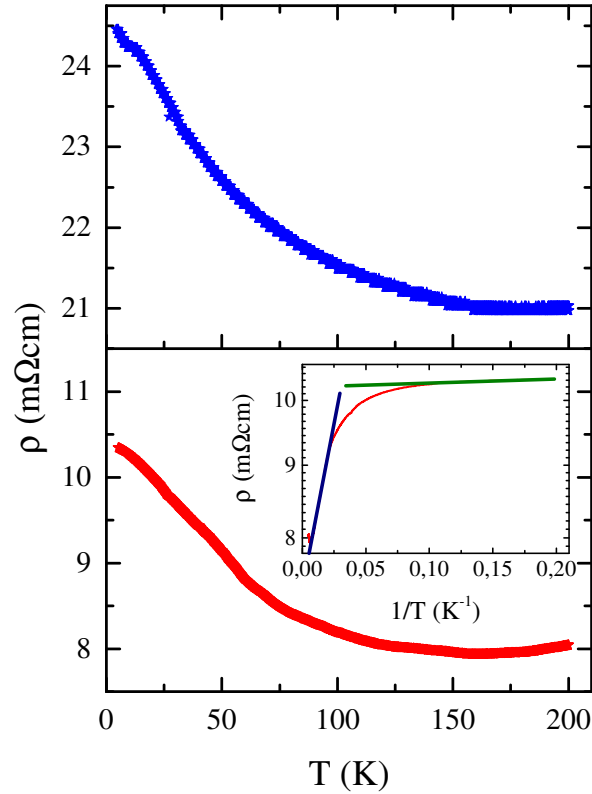


Abbildung 3.8.: Temperaturabhängiger spezifischer Widerstand von zwei einkristallinen MnB_4 -Proben; das inset zeigt den Versuch via Arrhenius-Plot-Auftragung Werte für eine Energielücke zu bestimmen, für Details siehe Text; aus Ref. [27] entnommen.

Temperatur zu bestimmen (siehe Linien im Inset von Abb. 3.8). Diese Art der Analyse würde Bandlückenenergien zwischen einigen 10^{-6} und 10^{-4} eV ergeben, was deutlich zu klein ist, um schlüssige Werte zu reflektieren.

Zusammengefasst zeigt der spezifische Widerstand von einkristallinem MnB_4 keine Charakteristiken wie sie bei einem konventionell metallischen System zu erwarten wären. Darüber hinaus ist es nicht möglich das temperaturabhängige Verhalten des spezifischen Widerstandes durch ein einfaches halbleitendes System zu erklären. Das wird außerdem bei der Betrachtung der Absolutwerte des spezifischen Widerstandes

von MnB_4 deutlich. Die Werte sind mit einigen zehn $\text{m}\Omega\text{cm}$ kleiner als bei einem herkömmlichen Halbleiter im selben Temperaturbereich, wo Werte größer als Ωm zu erwarten sind. Außerdem ist bei MnB_4 die Temperaturabhängigkeit deutlich schwächer (weniger als eine Größenordnung Änderung von ρ bei zwei Größenordnungen Änderung der Temperatur), und zu höheren Temperaturen neigt MnB_4 zusätzlich dazu die metallische Charakteristik einer positiven Steigung von $d\rho/dT$ auszubilden.

Diese Charakteristiken finden eine Erklärung, die konsistent mit den Vorhersagen aus der Bandstrukturechnung von Knappschneider et al. [42] sind. In dieser theoretischen Vorhersage aus der DFT-Berechnung erzeugen Perierls-Verzerrungen ein Pseudo-Gap in der Zustandsdichte nahe der Fermi-Energie von MnB_4 . Das Vorhandensein eines Pseudo-Gaps an sich würde einen halbleiterähnlichen Widerstand erzeugen (steigender Widerstand bei sinkender Temperatur). Die ausgeprägte Probenabhängigkeit deutet auf Verunreinigungen hin, deren Energieniveaus im bzw. in der Nähe des Pseudo-Gaps liegen. Das Pseudo-Gap und die Verunreinigungen erzeugen zusammen ein Widerstandsverhalten zwischen metallischen und halbleitenden Systemen (zum Vergleich sei der Fall von $\text{Fe}_{3-x}\text{V}_x\text{Al}$ erwähnt und wie hier Verunreinigungen die Transporteigenschaften von solchen Pseudo-Gap-Systemen beeinflussen können [53–55]). Für verwandte Boridsysteme wurde außerdem die Möglichkeit von „self-doping“-Effekten diskutiert [31, 56, 57].

In Kontext von Verunreinigungen in einem Pseudo-Gap-System stellt sich die Frage, ob die ferromagnetische Signatur (wie in Ref. [43] beobachtet) extrinsischer oder intrinsischer Natur ist. Aus diesem Grunde ist in Abb. 3.9 die temperaturabhängige Suszeptibilität von einkristallinem MnB_4 dargestellt (Gewicht der Probe: $30\text{ }\mu\text{g}$, angelegtes Magnetfeld $B = 0.1\text{ T}$). Im Rahmen der Datenanalyse wurde der diamagnetische Anteil des Apiezon-Fettes, das zum Fixieren der Probe verwendet wurde, von den Rohdaten abgezogen. Oberhalb von 100 K ist das gemessene Signal sehr klein und befindet sich im Bereich der Auflösungsgrenze des SQUID-Magnetometer. Diese Erkenntnis steht im Widerspruch zu den Beobachtungen in Ref. [43]. Bei tiefen Temperaturen unter 100 K geht die Suszeptibilität in ein paramagnetisches Verhalten über. Die

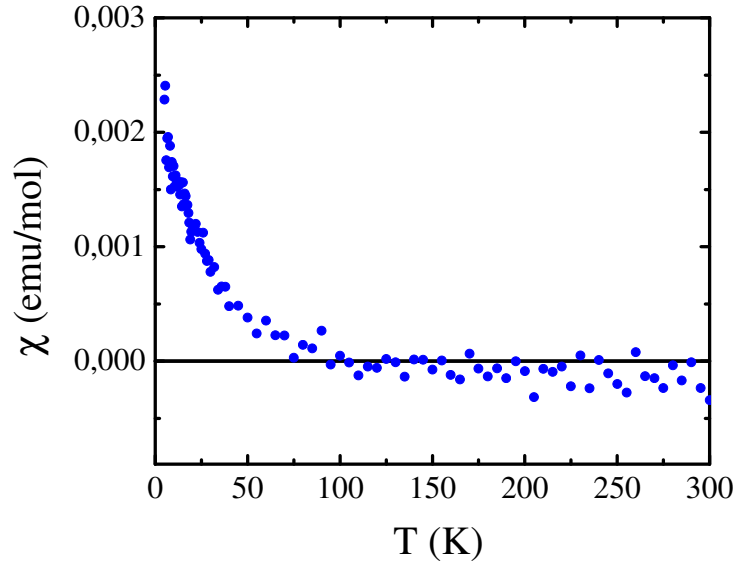


Abbildung 3.9.: Temperaturabhängige Suszeptibilität von einkristallinem MnB_4 , für Details siehe Text; aus Ref. [27] entnommen.

Absolutwerte in diesem Bereich sind aber immer noch mehr als eine Größenordnung kleiner als in Ref. [43]. Für eine erste Interpretation der Suszeptibilität von einkristallinem MnB_4 nehmen wir an, dass das magnetische Signal vollständig intrinsischer Natur ist. Das würde implizieren, dass das sehr kleine Signal bei hohen Temperaturen (> 100 K) eine intrinsische Eigenschaft des MnB_4 widerspiegelt (möglicherweise diamagnetisch), was konsistent mit der Idee eines Pseudo-Gaps in der Bandstruktur, aber im Widerspruch zu Gou et al. [43] wäre. Andererseits, immer noch annehmend, dass die Suszeptibilität intrinsischer Natur ist, würde das paramagnetische Verhalten bei tiefen Temperaturen durch einen Phasenübergang in einen ferromagnetischen Zustand übergehen, dieses allerdings mit einem sehr kleinen magnetischen Moment in der Größenordnung von kleiner als $0.001 \mu_B$. Zusammen machen die Idee eines ferromagnetischen Zustandes, der aus einem diamagnetischen Zustand entsteht, und das kleine magnetische Moment diese Interpretation unwahrscheinlich. Die Widersprüche, die dieses Szenario aufwirft, können allerdings dadurch erklärt werden, dass der bei tiefen Temperaturen auftretende Paramagnetismus parasitärer Natur ist und

durch paramagnetischen Verunreinigungen verursacht wird.

Wenn auf der anderen Seite das intrinsische magnetische Verhalten von MnB_4 paramagnetisch ist (wie von Gou et al. beschrieben [43]), so dass es vom diamagnetischen Signal des Probenhalters/des Apiezens überdeckt wäre, würde das ein äußerst schwaches paramagnetische Verhalten bedeuten (χ wäre somit in der Größenordnung von 10^{-5} emu/mol). Dieses Verhalten ist ebenfalls inkonsistent mit dem Modell von Gou et al. [43]. Bei der Betrachtung dieses Verhaltens könnte die Idee eines Pauli-Paramagnetismus mit kleiner Zustandsdichte nahe der Fermi-Energie respektive ein Pseudo-Gap-System entstehen, der solch eine magnetische Signatur hervorruft. Aber auch hier würde dies nicht das Curie-ähnliche Verhalten wie das paramagnetische Ansteigen der Suszeptibilität bei tiefen Temperaturen erklären, welches eher den paramagnetischen Verunreinigungen zugeschrieben werden kann.

In Anbetracht des magnetischen Verhalten von MnB_4 ist das folgende Szenario das wahrscheinlichste: Das Hochtemperaturverhalten spiegelt das intrinsische Verhalten des Pseudo-Gaps von MnB_4 wieder. Bei tiefen Temperaturen erzeugen einzelne magnetische Mn-Verunreinigungen ein schwaches paramagnetisches/ferromagnetisches Signal. Wenn wir ein typisches Moment von einigen μ_B pro Mn-Atom für diese Verunreinigungen annehmen, würden weniger als 0.1% Mn-Verunreinigungen das beobachtete Signal erklären. Aus unseren Daten können wir nicht eindeutig bestimmen, ob sich in der Kristallstruktur von MnB_4 verteilte Verunreinigungen befinden, bzw. ob sie zu Clustern an Korngrenzen agglomerieren o.ä.. Einzig die Beobachtung des Übergangs zu einer paramagnetischen Suszeptibilität bei einer vergleichsweise hohen Temperatur von 100 K spricht mehr für das Szenario von größeren Clustern als von einzeln verteilten Verunreinigungen in der Kristallmatrix.

3.4. Zusammenfassung

Im Rahmen der Untersuchung des elektronischen und magnetischen Grundzustandes von MnB_4 haben wir herausgearbeitet, dass die elektronischen Transporteigenschaften einem Pseudo-Gap in der Zustandsdichte nahe der Fermi-Energie zugeschrieben werden können. Diese Beobachtung ist konsistent mit der theoretischen Analyse von Knappschneider et al. [42]. Weiter konnten wir zeigen, dass die magnetische Suszeptibilität bei Raumtemperatur entweder diamagnetisch oder sehr schwach paramagnetisch ist, was wiederum konsistent mit dem Konzept eines Pseudo-Gap-Materials ist. Mit aller Wahrscheinlichkeit reflektiert das paramagnetische Tieftemperatursignal das Vorhandensein von magnetischen Verunreinigungen, die mit einer Dichte von unter einem Prozent im Material vorliegen.

Vor allem aber konnten wir keine Hinweise für einen korrelierten magnetischen Zustand finden, wie es Gou et al. beschrieben haben [43]. In beiden Untersuchungen [42, 43] ist von der selben Kristallstruktur die Rede, und dass strukturelle Instabilitäten unterschiedliche Arten von MnB_4 hervorbringen können, was implizit von weiterführenden Bandstrukturrechnungen vorhergesagt wird [46, 48]. Doch dieses Konzept erklärt nicht das beobachtete Verhalten. Oder mit anderen Worten, unsere Untersuchungen ergeben, dass es sich bei MnB_4 um ein „dreckiges“ Pseudo-Gap-System handelt.

Dennoch ist die Sensibilität der unterschiedlichen Bandstrukturrechnungen basierend auf der kristallografischen Struktur und magnetischer Polarisierung beachtlich [39–48]. Die vorhergesagte strukturelle Instabilität [46, 48] bedarf weitere Untersuchungen. Aus diesen Berechnungen geht hervor, dass die strukturelle Stabilität bei höheren Temperaturen von MnB_4 eng mit den elektronischen Eigenschaften verknüpft ist, bzw. dass die Elektron-Phonon-Kopplung bei der Modellierung dieses Materials von größerer Bedeutung erscheint.

4. MnSi

In diesem Kapitel werden die Untersuchungen des Magnetowiderstandes von MnSi-Dünnschichten in hohen Magnetfeldern vorgestellt und diskutiert. Wir haben herausgearbeitet, dass der Magnetowiderstand im Rahmen von Spinfluktuationstheorie betrachtet werden kann. Dies ermöglicht uns einen direkten Vergleich unserer Daten der Dünnschichten mit den Untersuchungen an Bulk-Material. Trotz der qualitativen Ähnlichkeiten zwischen Bulk- und Dünnschicht-Daten gibt es deutliche quantitative Unterschiede. Dabei stellt sich heraus, dass sich diese durch Unterschiede in den Spinfluktuationsspektren von MnSi Bulk- und Dünnschicht-Material äußern.

4.1. Einführung

Der kubische Helimagnet MnSi beschäftigt die Forschung im Rahmen des Festkörpermagnetismus bereits seit einem halben Jahrhundert [58–60]. Das Material gehört zu der Gruppe der *B20*-Verbindungen und wurde ursprünglich im Kontext der Forschung zur Spinfluktuationstheorie untersucht [1, 12]. Später wurde heraus gefunden, dass die helimagnetische Ordnung ($T_N = 29$ K) durch angelegten Druck unterdrückt werden kann, was den Fokus der Untersuchungen in Richtung Quantenkritikalität in itinerante *d*-Metallen schob [60, 61]. Letztlich zeigte sich, dass die früh entdeckte feldinduzierte *A*-Phase in MnSi [1] eine Skyrmionen-Gitter-Phase repräsentiert [62], was das Material zum Vorzeigematerial für die Untersuchung von Skyrmionen-Physik machte. Bei Skyrmionen handelt es sich um topologisch geschützte magnetische Strukturen.

Damit Skyrmionen in einem Festkörper auftreten können, ist grundsätzlich eine fehlende Inversionssymmetrie im magnetischen Gitter (wie zum Beispiel in kubischen helimagnetischen B20-Strukturen) notwendig. Anschließend kann durch das Zusammenspiel aus der Dzyaloshinskii-Moriya-Wechselwirkung und dem Heisenberg-Austausch die Bildung der wirbelartigen Spinstrukturen durch die Ginzburg-Landau-artige Parametrisierung gezeigt werden [62]. Da die Spinwirbel auf einer fehlenden Inversionssymmetrie basieren, kann bei den entstehenden Strukturen von einem Drehsinn gesprochen werden, der im Allgemeinen in eine links- oder rechtshändige Chiralität unterschieden wird.

Um der Skyrmionen-Natur genauer auf den Grund zu gehen, wurde versucht MnSi auf unterschiedliche Art und Weise als Dünnsfilm-Proben zu synthetisieren. Dies basiert auf der Idee, dass die skyrmionische Phase sich favorisiert in zweidimensionalen Strukturen ausbildet. Somit entwickelte sich Dünnsfilm-MnSi zu einem prominenten Kandidat, um skyrmionische Eigenschaften zu untersuchen [29, 63–83]. Diese Untersuchungen brachten sowohl diverse Gemeinsamkeiten als auch signifikante Unterschiede zwischen den Dünnsfilm- und dem entsprechenden Bulk-Verhalten von MnSi hervor.

Zuerst sei hier erwähnt, dass der Übergang von der helikalen magnetischen Phase bei Dünnsfilm-MnSi unterhalb von $T_N \sim 45$ K stattfindet [29, 63–83]. Dieses im Vergleich zu Bulk-Material erhöhte T_N ist auf die Verzerrung zurückzuführen, die durch den Unterschied zwischen den Gitterparametern des Si-Substrates und denen des MnSi entstehen. Diese Verzerrungen sind phänomenologisch mit einem negativen Druck innerhalb des Dünnsfilm-Materials zu vergleichen. Experimente zeigen, dass die Übergangstemperatur T_N von MnSi durch Anlegen eines externen Druckes eingestellt werden kann [75, 84, 85].

Darüber hinaus beeinflusst die oben erwähnte Verspannung ebenfalls die magnetischen Eigenschaften in einem angelegten magnetischen Feld, was sich zum Beispiel durch ein erhöhtes kritisches Feld B_C in den magnetisch polarisierten Zustand in dünnen Filmen äußert. Am meisten fällt auf, dass es bisher keinen experimentellen Beweis gibt, dass in MnSi-Dünnsfilm-Proben eine Skyrmionen-Gitter-Phase in der soge-

nannten „out-of-plane“ Geometrie auftritt. Außerdem gibt es keinen eindeutigen Konsens innerhalb der bisherigen Untersuchungen, ob ein „Nicht-Beobachten“ des Skymionen-Gitters eine intrinsische oder extrinsische Eigenschaft der dünnen Filme ist. Auf der einen Seite wird argumentiert, dass der negative Druck und die druckinduzierte Anisotropie in MnSi-Dünnschichten den Parameterbereich verschiebt, in dem sich die Skymionen stabil ausbilden können [65]. Auf der anderen Seite neigen die MnSi Filme bei ihrer Synthese auf einem Si-Substrat dazu, durch ein Inselwachstum zu entstehen. Das führt zu sogenannten „merohedrally twinned“-Dünnschichten, d.h. der Film enthält Bereiche mit links- und rechtshändiger Kristallinität. In diesem Fall würden Skymionen entstehen, die einen gegensätzlichen Sinn der Rotation aufweisen, und die sich wiederum auslöschen, wenn sie aufeinander treffen. Hierbei würde, aufgrund des nichtmonochiralen Charakters, das Nichtbeobachten eines Skymionen-Gitters extrinsischer Natur sein.

Der soweit dokumentierte Unterschied im Verhalten zwischen Dünnschicht- und Bulk-MnSi wirft somit die Frage auf, ob dieser auf fundamentale Materialeigenschaften zurückzuführen ist. Bulk-MnSi wird als ein Beispiel für ein System gesehen, für welches Spinfluktuationstheorie genutzt wird, um die Materialeigenschaften quantitativ zu beschreiben [12]. Dadurch liegt es auf der Hand, dass die selben Untersuchungen, wie sie auch bei Bulk-MnSi durchgeführt wurden, Aufschluss über die Themen wie residuelle Unordnung, strukturelle Nieder- (Zwei-) Dimensionalität oder den Einfluss eines negativen Druckes innerhalb eines dünnen Filmes geben. Deshalb haben wir Messungen des Magnetowiderstandes an Dünnschicht-MnSi in hohen Magnetfeldern durchgeführt. In unserem vergleichenden Ansatz führen wir die selbe Analyse durch, wie sie bereits an einkristallinen MnSi-Bulk-Proben angewendet wurde [1]. Basierend auf diesem Vergleich diskutieren wir in diesem Kapitel die elektronischen Eigenschaften von Dünnschicht-MnSi in Kontext der Spinfluktuationstheorie.

4.2. Experimentelle Umsetzung

Für die Hochmagnetfeldmessungen wurden zwei dünne Filme MnSi (Dicke der Probe #1: 10 nm; Probe #2 30 nm) durch Molekularstrahlepitaxie auf einem [111] Si-Substrat synthetisiert (zur Frage der Herstellung der Proben siehe Ref. [29]). Um einen direkten Vergleich zwischen MnSi-Dünnschichten und MnSi-Bulk-Material bezüglich der magnetischen Transporteigenschaften zu ermöglichen, wurden die MnSi-Dünnschichten durch Elektronenstrahlolithographie (siehe Ref. [29]) mikrostrukturiert. Dies erlaubt Widerstandsmessungen mit einer konventionellen Vier-Punkt-AC-Methode wie für das Bulk-Material. Die Strukturen sind 50 μm breit und die Spannungskontakte haben einen Abstand von 70 μm (vgl. Abschnitt 2.2.1 „Nanostrukturierte Dünnschicht-Proben“).

Die Hochmagnetfeldmessungen an den Dünnschicht-Proben wurden am Laboratoire National des Champs Magnétiques Intenses in Grenoble, France durchgeführt. Der Magnetowiderstand wurde bei verschiedenen Temperaturen in einem Bereich zwischen 3 und 100 K in einem externen Magnetfeld B bis 24 T gemessen (verwendet wurde der M1 Magnet in Kombination mit einem ^4He -Kryostaten). Für beide Filme wurde das externe Magnetfeld jeweils senkrecht und parallel zum Probenstrom I angelegt ($B \perp I$ und $B \parallel I$).

Für den direkten Vergleich zu den Ergebnissen aus Ref. [1] haben wir ebenfalls MnSi-Bulk-Kristalle durch eine Czochralski Tri-Arc Methode synthetisiert. Die Kristalle wurden, wie weiter unten beschrieben, umfangreich charakterisiert und im Folgenden mit #3, #4 und #5 bezeichnet. Der transversale Magnetowiderstand ($B \perp I$) der Bulk-Proben wurde in einem Temperaturbereich zwischen 2 und 100 K in einem externen Magnetfeld bis 8 T gemessen. Zusätzlich wurde der Nullfeldwiderstand von allen Proben in einem Temperaturbereich zwischen 2 und 300 K bestimmt.

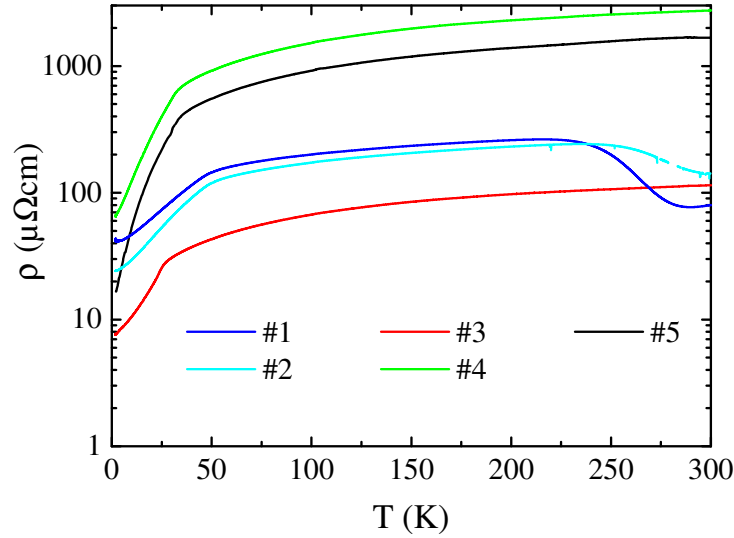


Abbildung 4.1.: Nullfeldwiderstand unterschiedlicher MnSi-Proben (#1: Dünnsfilm mit 10 nm Dicke, #2: Dünnsfilm mit 30 nm Dicke, #3: Bulk mit RRR von 15, #4: Bulk mit RRR von 42, #5: Bulk mit RRR von 104); für Details siehe Text.

4.3. Ergebnisse und Diskussion

In Abb. 4.1 ist der spezifische Nullfeldwiderstand unserer Bulk- und Dünnsfilm-Proben vergleichend dargestellt. Qualitativ ist das Gesamtverhalten ähnlich zu den bisher gemessenen Daten von einkristallinem und Dünnsfilm-Material [29, 69, 86]. Für beide Arten von Proben ist ein metallisches Temperaturverhalten zu verzeichnen. Man sieht eine Anomalie bei dem Übergang bei T_N in die helikalen Zustand, ein T^2 -artiges Verhalten unterhalb T_N und eine Biegung des Widerstandes oberhalb von T_N , die auf Spinfluktuationen, überlagert mit dem phononischen Widerstandsbeitrag, zurückzuführen sind. Im Detail sollten allerdings noch weitere Einzelheiten genauer betrachtet werden. Die Übergangstemperaturen der MnSi-Einkristalle in den helimagnetischen Zustand wurden durch Messungen des magnetischen Momentes zu #3: $T_N = 23.3$ K, #4: $T_N = 28.5$ K und #5: $T_N = 29.4$ K bestimmt. Dabei wurde das jeweilige lokale Maximum als T_N definiert (vgl. Abb. 4.2). Die tiefere Übergangstemperatur für Probe #3 ist auf eine leicht verän-

derte stöchiometrische Zusammensetzung bei der Synthese des Kristalls zurückzuführen. Die Proben besitzen alle eine ähnliche Temperaturabhängigkeit im spezifischen Widerstand ρ , aber die Absolutwerte des spezifischen Widerstandes unterscheiden sich jeweils im Bereich von einer Größenordnung. Diese Unterschiede von ρ in den Absolutwerten lassen sich nicht auf Risse und Cracks in den Einkristallen zurückführen und sind bis heute noch nicht vollständig verstanden. Aus diesem Grund dient das residuale Restwiderstandsverhältnis „residual resistivity ratio“ (RRR), hier definiert als $\rho_{300\text{K}}/\rho_{2\text{K}}$, als ein Maß für die Probenqualität. Die Werte des RRR der unterschiedlichen Kristalle wurden zu #3: RRR = 15, #4: RRR = 42 und #5: RRR = 104 bestimmt. Daraus schließen wir, dass Probe #5 die beste kristalline Qualität aufweist, auch wenn der spezifische Raumtemperaturwiderstand mit $1700 \mu\Omega\text{cm}$ ungewöhnlich hoch ist. Zum Vergleich wurde aus den Daten von Ref. [1] ein RRR von ~ 60 für den in jener Arbeit untersuchten Einkristall bestimmt. In der Literatur wird generell der Wert des RRR als Merkmal der Probenqualität genommen. Vor diesem Hintergrund ergab eine Literatursuche, dass heutzutage (im Vergleich zu Ref. [1] aus dem Jahr 1982) ein Wert RRR = 100 als Kennzeichen einer „guten Probenqualität“ gesehen wird. Für die MnSi-Dünnschicht-Proben wurde durch die Messung des spezifischen Widerstandes und der Suszeptibilität die Übergangstemperatur in die helimagnetische Phase zu $T_N = 45 \text{ K}$ bestimmt. Dies ist konsistent mit vorangegangenen Veröffentlichungen [29, 63–83]. Im Unterschied zum einkristallinen Verhalten zeigen beide Filme bei hohen Temperaturen einen Abfall von ρ . Wie wir in Ref. [29] gezeigt haben, ist dieser Abfall auf die Ausbildung einer Schottky-Barriere zwischen MnSi-Film und Si-Substrat zurückzuführen. Diese sorgt dafür, dass bei hohen Temperaturen ein Kurzschluss durch das Substrat erfolgen kann, was sich wiederum in dem Abfall von ρ widerspiegelt. Hierbei sei anzumerken, dass dieser Effekt keinen Einfluss auf die unten gezeigten Magnetowiderstandsmessungen hat, da wir zum einen eine normalisierte Form der Daten verwenden und bei tiefen Temperaturen der erwähnte Kurzschluss durch das Substrat in den Daten keine Rolle mehr spielt.

Es wurden für alle Proben ausgedehnte Sätze von Magnetowiderstandsmessungen aufgenommen. Als Beispiel ist in Abb. 4.3 der Magnetowiderstand MR einer Dünnschicht-Probe (#2) dargestellt. Der Magnetowi-

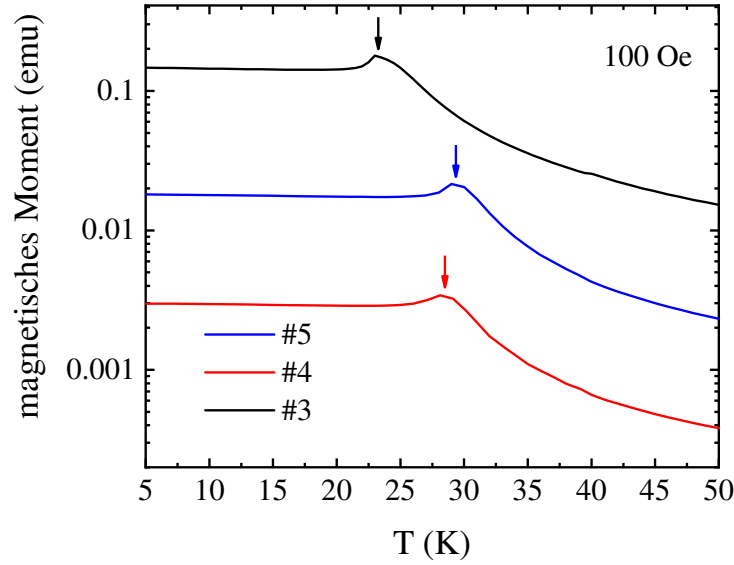


Abbildung 4.2.: Magnetisches Moment der MnSi-Einkristalle als Funktion der Temperatur, bei einem konstanten Feld von 100 Oe. Die Pfeile verdeutlichen die Übergangstemperaturen der jeweiligen Messungen. Dabei wurde das lokale Maximum als T_N definiert.

derstand wurde dabei wurde als $MR = (\rho(B, T) - \rho(B = 0, T)) / \rho(B = 0, T)$ definiert und in diesem Fall in transversalen Magnetfeldern B bis 24 T in einem Temperaturbereich zwischen 3 und 100 K aufgenommen. Qualitativ und semiquantitativ, wie weiter unten diskutiert wird, ist das allgemeine Verhalten für die 30 nm Probe in transversaler Anordnung ähnlich wie für die 10 nm Probe und der zweiten Feldanordnung ($B \parallel I$). Bei tiefen Temperaturen hat der Magnetowiderstand ein S -förmiges Verhalten, welches schnell bei wenigen Tesla in eine Sättigung geht. Wenn die Temperatur gegen T_N steigt, fällt der MR und das S -förmige Verhalten verbreitert sich, sodass eine Sättigung nicht mehr erreicht wird. Letztlich verbleibt oberhalb von T_N nur die abfallende Krümmung $MR \propto B^2$ vom umgekehrt S -förmigen Charakter und die Gesamtgröße des MR nimmt, im Vergleich zu den relativen Werten nahe T_N im betrachteten Feldbereich, ab.

Aus den in Abb. 4.3 dargestellten Daten wurde für einen Vergleich

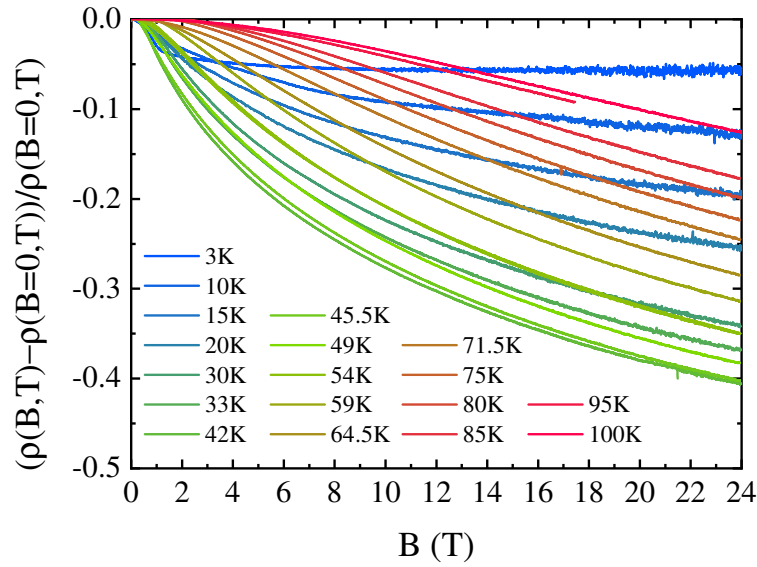


Abbildung 4.3.: Magnetowiderstand in transversalen Magnetfeldern bis 24 T für einen 30 nm MnSi-Dünnsfilm; für Details siehe Text.

mit Ref. [1] eine Temperaturabhängigkeit von ρ des 30 nm dicken Films in einem transversal angelegten Magnetfeld bis 24 T konstruiert, welche wir in Abb. 4.4 dargestellt haben. Qualitativ ist das Verhalten ähnlich wie das in Ref. [1] gezeigte (vgl. Abb. 6 dort). Man sieht eine Unterdrückung des spezifischen Widerstandes in Magnetfeldern über einen weiten Temperaturbereich, wobei der größte Effekt in der Nähe von T_N auftritt. Wir halten fest, dass das kritische Feld der helikalen Phase von MnSi ca. bei 1 T liegt, was sich durch ein Verschwinden des Knicks bei T_N im spezifischen Widerstand bei angelegten Magnetfeldern zeigt und in der Darstellung Abb. 4.4 zu sehen ist. Die qualitativen Ähnlichkeiten im Verhalten zu Ref. [1] gelten natürlich ebenfalls für die Messungen an den Einkristallen und der 10 nm dicken Dünnsfilm-Probe und dessen zweite Magnetfeldkonfiguration ($B \parallel I$) (welche hier allerdings nicht dargestellt sind).

Die Interpretation des Magnetowiderstandes von MnSi basiert auf dem Szenario einer Unterdrückung der Spinfluktuationen in Magnetfeldern. Die Spinfluktuationen treten in einem sehr weiten Temperaturbereich

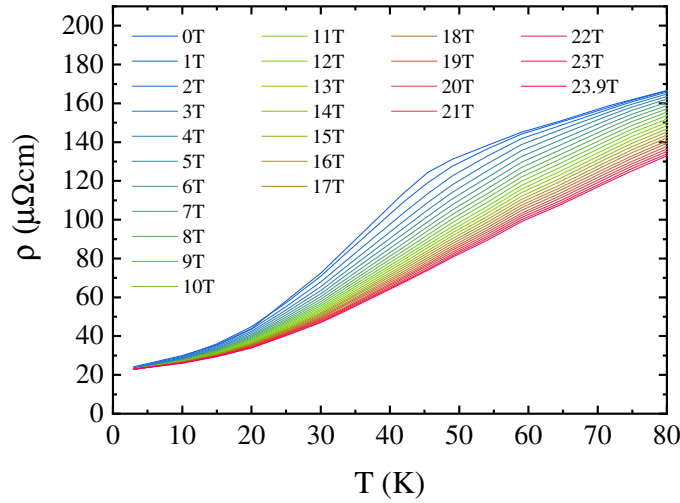


Abbildung 4.4.: Spezifischer Widerstand in transversalen Magnetfeldern bis 24 T für einen 30 nm MnSi-Dünnsfilm; für Details siehe Text.

auf. Ein alternativer Ansatz, um diesen Effekt darzustellen, ist die Verwendung von Konturplots, wie wir es in Abb. 4.5 aus den Daten von Abb. 4.3 getan haben. In dieser Form der Darstellung reflektiert die Farbcodierung die Größe des Magnetowiderstandes. Dadurch wird gut illustriert, dass der größte Effekt des negativen Magnetowiderstandes nahe T_N auftritt. Interessanterweise demonstriert der Konturplot zudem, dass im Magnetowiderstand eine Art Asymmetrie vorliegt. Der Magnetowiderstand ist scheinbar stärker bei Temperaturen $T < T_N$ als bei $T > T_N$. Wird der MR so interpretiert, dass er eine Unterdrückung der Spinfluktuationen widerspiegelt, könnte man elementar argumentieren, dass der Übergang in die magnetische Ordnung einen Teil der Spinfluktuationen unterdrückt, wie es auch durch den Abfall der Steigung im Nullfeldwiderstand bei T_N anzunehmen ist. Das sollte aber für eine normalisierte Größe, wie bei dem von uns definierten MR , lediglich ein vergleichbar kleines Signal verursachen, verglichen mit der Situation im Nullfeld, wo keine Spinfluktuationen unterdrückt werden. Deshalb sollte die Asymmetrie erwartungsgemäß als ein stärkerer MR oberhalb T_N ausfallen, wie es zum Beispiel beim schwachen Ferromagneten NbFe₂ [87] der Fall ist.

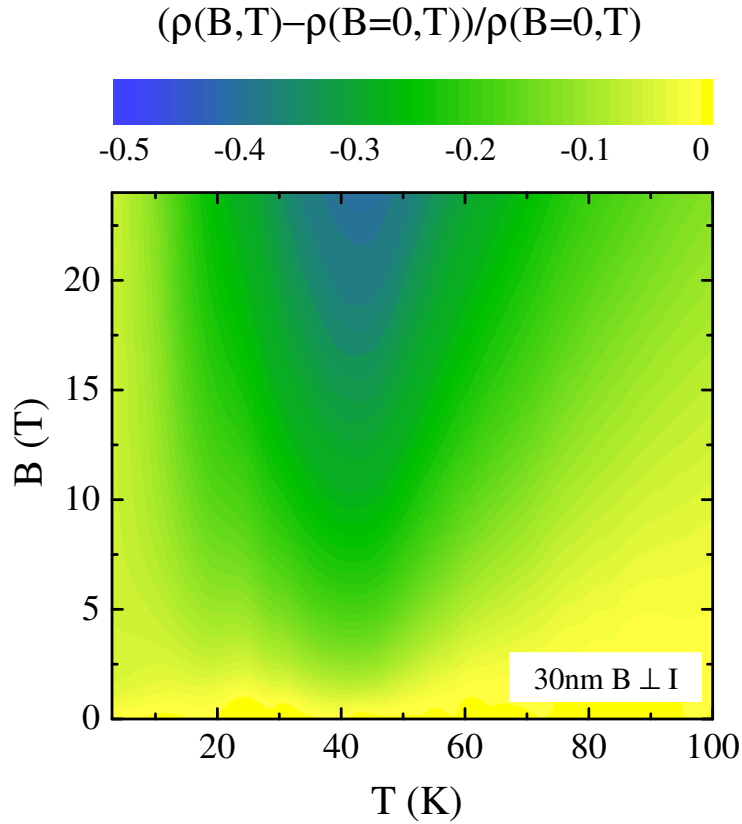


Abbildung 4.5.: Konturplot des Magnetowiderstandes MR in transversalen Magnetfeldern bis 24 T für einen 30 nm MnSi-Dünnsfilm; für Details siehe Text.

Tatsächlich zeigen die Messungen des Magnetowiderstandes an einkristallinem MnSi (in diesen Fall nur bis 8 T) eher ein vergleichbares Signal wie die Beobachtungen des Magnetowiderstandes an einkristallinem NbFe₂. Dies ist in Abb. 4.6 dargestellt, wo wir den Konturplot von Probe #5 in der selben Art wie für die Dünnsfilm-Daten erstellt haben. Hier zeigt die Asymmetrie des Magnetowiderstandes deutlich in Richtung Temperaturen $T > T_N$, was eine stärkere Unterdrückung der Spinfluktuationen in der paramagnetischen Phase widerspiegelt.

Zusammengefasst und als qualitative Interpretation zeigen die Magnetowiderstandsverhalten der Bulk- und Dünnsfilm-Proben alles in allem große Ähnlichkeiten. Allerdings scheinen im Detail subtile Unterschiede

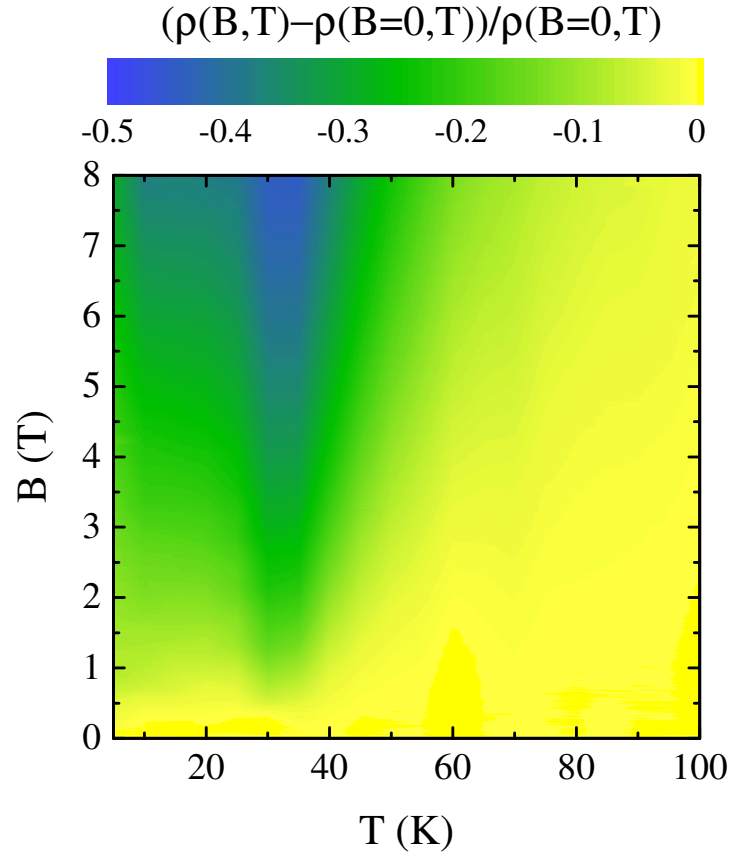


Abbildung 4.6.: Konturplot des Magnetowiderstandes MR in transversalen Magnetfeldern bis 8 T für den Einkristall MnSi, Probe #5; für Details siehe Text.

aufzutauchen. Ob diese subtilen Unterschiede extrinsischer oder intrinsischer Natur sind, ist bisher nicht eindeutig zu klären. Es scheint denkbar, dass die Verteilung der Übergangstemperaturen in den Filmen ein Ausschmieren des Magnetowiderstandes zu tieferen Temperaturen verursacht. Dies könnte wiederum ein Ergebnis der größeren strukturellen Inhomogenität bei MnSi-Dünnschichten im Vergleich zu MnSi-Bulk-Proben sein.

Um letztlich das ähnliche Verhalten der beiden Dünnschicht-Proben (Probe #1 und Probe #2) und der unterschiedlichen Magnetfeldgeometrie ($B \parallel I$ und $B \perp I$) zu illustrieren, sind in Abb. 4.7 - 4.9 die Konturplots für die

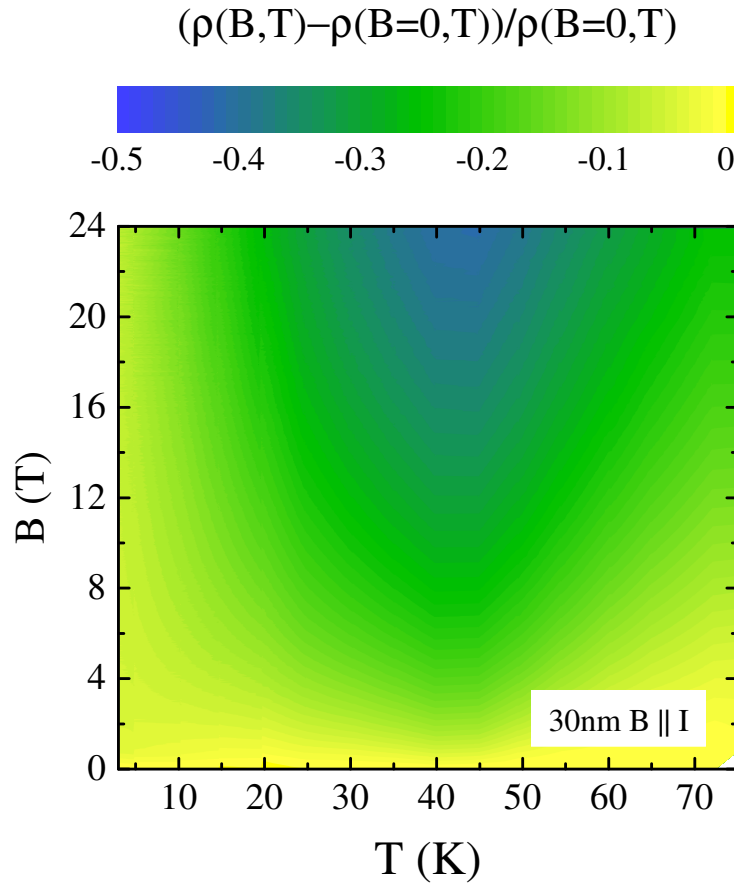


Abbildung 4.7.: Konturplot des Magnetowiderstandes MR in longitudinalen Magnetfeldern bis 24 T für einen 30 nm MnSi-Dünnsfilm; für Details siehe Text.

Magnetowiderstände der übrigen Datensätze dargestellt. Alles in Allem sind zwischen den Datensätzen große Ähnlichkeiten zu erkennen, außer dass der magnetoresistive Effekt bei der 10 nm Probe, verglichen mit dem 30 nm Film, etwas schwächer ausgeprägt ist. Das könnte allerdings einfach nur reflektieren, dass der residuale Nullfeldwiderstand der 10 nm Probe größer ist als der des 30 nm Filmes, wodurch das Absolutsignal des MR reduziert wird (vgl. Abb. 4.1).

Experimentell konnten somit zwei Punkte gezeigt werden: a.) Es gibt keine elementaren Unterschiede zwischen den Magnetowiderstandsdaten

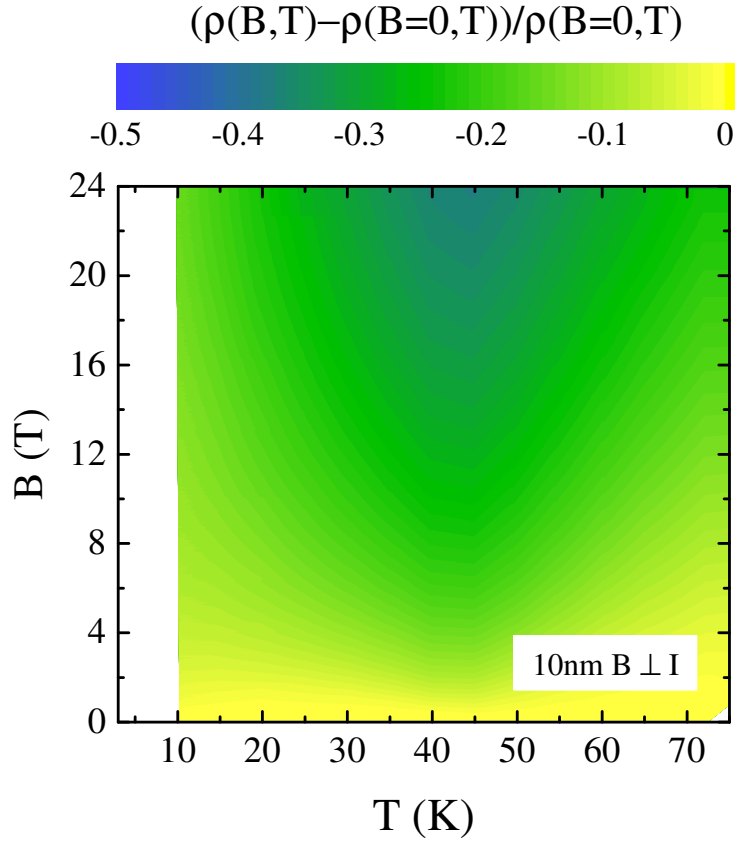


Abbildung 4.8.: Konturplot des Magnetowiderstandes MR in transversalen Magnetfeldern bis 24 T für einen 10 nm MnSi-Dünnsfilm; für Details siehe Text.

der MnSi-Dünnsfilme mit unterschiedlicher Dicke und bei unterschiedlicher Richtung des angelegten Magnetfeldes. Das ist darauf zurückzuführen, dass sich die Filme immer noch im Sinne der elektronischen und magnetischen Eigenschaften im 3D-Limit befinden, was konsistent mit dem Argument ist, dass durch die Dicke entstehende „size“-Effekte erst bei einer Filmdicke unterhalb ~ 10 nm signifikanten Einfluss auf die Materialeigenschaften haben [68]. Außerdem reflektiert das Fehlen von Unterschieden zwischen longitudinalem und transversalem Magnetowiderstand die Morphologie unserer Filme, d.h. die durch das epitaktische Wachstum entstehenden Inseln mit einem durchschnittlichen Durchmesser von ~ 50 nm [29]. Ein signifikanter Streuanteil wird durch

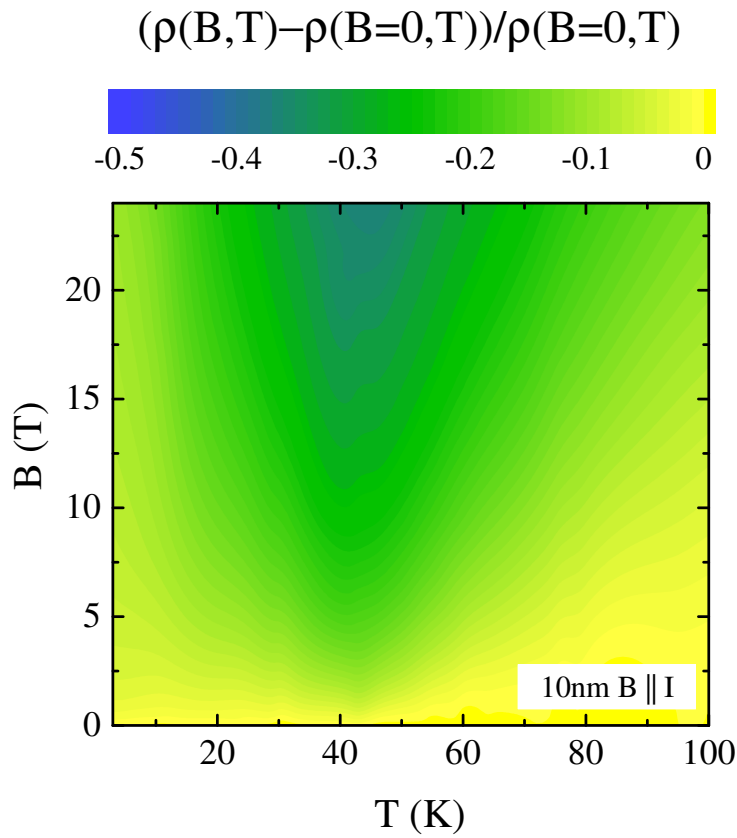


Abbildung 4.9.: Konturplot des Magnetowiderstandes MR in longitudinalen Magnetfeldern bis 24 T für einen 10 nm MnSi-Dünnsfilm; für Details siehe Text.

Korngrenzen und die Oberfläche verursacht, welche in gleichem Maße in beiden experimentellen Geometrien vorkommen. Außerdem sollten Effekte wie das Auftreten von Skyrmionen, Existenz von Domänen oder Fermi-Flächenanisotropien etc. im Kontext eines longitudinalen und transversalen Magnetowiderstandes nur eine sekundäre Rolle spielen.

b.) Auf einer qualitativen und semi-quantitativen Ebene gibt es große Ähnlichkeiten zwischen dem Magnetowiderstand von MnSi-Dünnsfilmen und einkristallinem Bulk-Material. Aus diesem Grund können wir mit der Analysemethode, wie sie Sakakibara et al. [1] durchgeführt haben, unsere Daten analysieren und anschließend vergleichen.

Anfangs halten wir fest, dass für schwache- oder beinahe ferromagnetische Metalle die Feldabhängigkeit des Tieftemperatur-Magnetowiderstandes wie nach Ref. [16] ausgedrückt werden kann:

$$R(T, B) = R_0 + R_2(B)T^2.$$

R_0 ist der residuelle Widerstand bei 0 K, während der zweite Term den Spinfluktuationseffekt eines itineranten schwach oder beinahe ferromagnetischen Materials widerspiegelt. Der Faktor $R_2(B)$ des Spinfluktuationstermes kann aus den MR -Daten bestimmt werden, indem $R(T, B) - R_0$ über T^2 aufgetragen wird. In dieser Auftragung und bei tiefen Temperaturen zeigen die $R(T, B) - R_0$ -Ergebnisse in dieser Auftragung ein lineares Verhalten mit T^2 , wobei die Steigung dem Faktor $R_2(B)$ entspricht. In Abb. 4.10 wurden exemplarisch die experimentellen Daten für den 10 nm Film in der oben erwähnten Darstellung aufgetragen, um aufzuzeigen, dass der Ansatz, den Sakakibara et al. [1] verwendet hat, auch auf unsere Daten angewendet werden kann. Durch lineare Fits von $R(T, B) - R_0$ über T^2 konnten so die $R_2(B)$ -Werte ermittelt werden. Im Bezug auf diese Art der Analyse muss erwähnt werden, dass der residuale Widerstand $R_{T,B=0}$ eine Temperaturabhängigkeit besitzt, die durch Phononstreuung verursacht wird, weshalb genauer gesagt $R(T, B) - R(T, B = 0) \propto T^2$ aufgetragen werden sollte. Tatsächlich erlaubt das Verwenden von R_0 als freien Fitparameter mit einer Variation um 10 % des Wertes (als erste Näherung) eine Verbesserung des Fittes, beeinflusst allerdings nicht die fundamentale Aussagen der Datenanalyse, d.h. der Feldabhängigkeit von $R_2(B)$.

Als nächster Schritt wird wie in Ref. [1] die normalisierte Feldabhängigkeit des Widerstandskoeffizienten $R_2(B)/R_2(B = 0)$ in Abb. 4.11 aufgetragen. In dieser Abbildung sind die Daten der beiden Dünnfilm-Proben in beiden Feldgeometrien, der Einkristalle als Referenzen, und die Daten aus Ref. [1] dargestellt. Durch das Auftragen der normalisierten Größen entfällt die Betrachtung der Fehler in der Bestimmung der Absolutwerte des Widerstandes. Aus der Auftragung wird unmittelbar deutlich, dass die dünnen Filme und die einkristallinen Proben ein qualitativ ähnliches Verhalten besitzen, wobei auf der quantitativen Seite deutliche Unter-

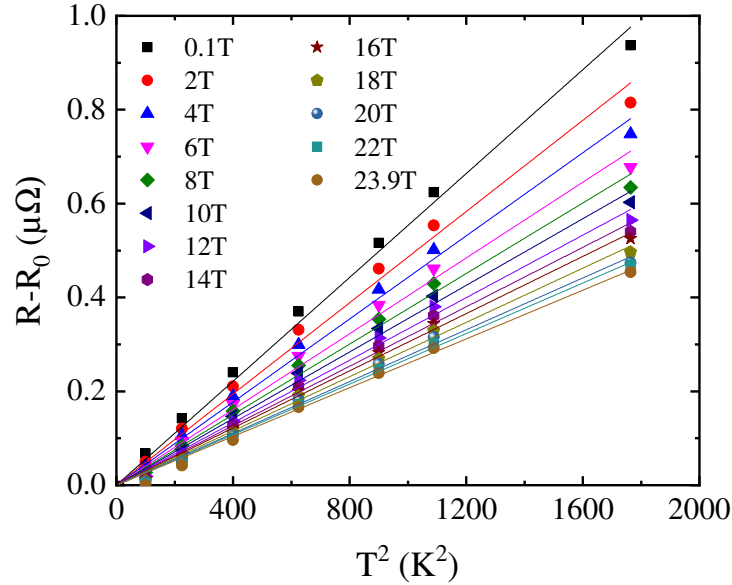


Abbildung 4.10.: Darstellung der Datenanalyse des Magnetowiderstandes MR in longitudinalen Magnetfeldern bis 24 T für einen 10 nm MnSi-Dünnsfilm; für Details siehe Text.

schiede zu erkennen sind. Als erstes und unter Berücksichtigung des kleineren Feldbereiches für die Messungen an den MnSi Einkristallen zeigen die Ergebnisse eine Übereinkunft mit den Einkristall-Daten von Sakakibara et al. [1], welche in der Abbildung mit aufgenommen sind. Unter Berücksichtigung der Restwiderstandsverhältnisse der vermessenen Kristalle, die sich bis zu einer Größenordnung unterscheiden, wird deutlich, dass Unordnungseffekte den Magnetowiderstand nicht signifikant beeinflussen.

Als nächstes wurde bei Sakakibara et al. herausgearbeitet, dass das Magnetowiderstandsverhalten in hohen Magnetfeldern für schwache oder beinahe ferromagnetische Metalle wie MnSi eine Feldabhängigkeit der Art $R_2(B)/R_2(B = 0) \propto B^{-1/3}$ besitzt [1, 16]. Die durchgezogenen Linien in Abb. 4.11 visualisieren solch eine Feldabhängigkeit. In guter Näherung trifft dies auch für die Einkristalle und dünnen Filme im Hochfeldbereich in den hier präsentierten Messungen zu. Daraus folgt, dass die Magnetowiderstandsergebnisse von MnSi-Dünnsfilm-Proben im

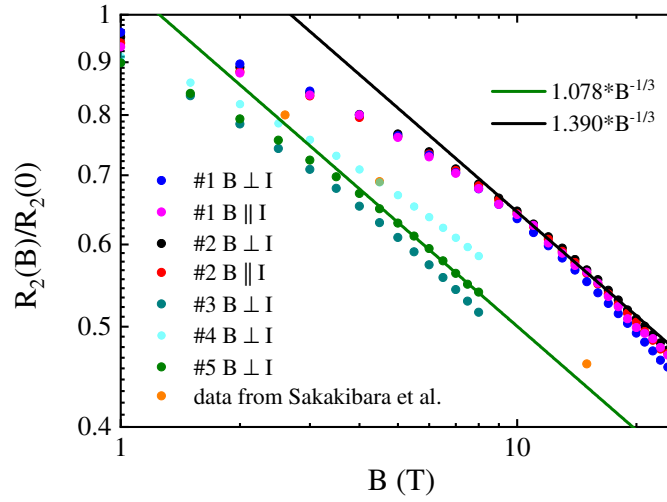


Abbildung 4.11.: Feldabhängigkeit des Magnetowiderstandkoeffizienten $R_2(B)/R_2(B = 0)$ von MnSi-Bulk und Dünnsfilm (#1: Dünnsfilm mit 10 nm Dicke, #2: Dünnsfilm mit 30 nm Dicke, #3: Bulk mit RRR von 15, #4: Bulk mit RRR von 42, #5: Bulk mit RRR von 104); für Details siehe Text.

Kern mit einer sogenannten selbst-konsistenten Renormalisierung, d.i. die „self-consistent renormalization“ (SCR) - Theorie der Spinfluktuationen beschrieben werden kann [12]. Auf der anderen Seite reflektieren die quantitativen Unterschiede zwischen Einkristallen und Dünnsfilmen einen Unterschied in den mikroskopischen Parametern innerhalb der SCR-Theorie, um die Spinfluktuationen zu beschreiben.

Für eine detailliertere Diskussion, wird der Ausdruck für den Magnetowiderstand in hohen Feldern aus Ref. [16] betrachtet (vgl. Abschnitt 2.1.4). Grundsätzlich zeigt sich, dass $R_2(B)/R_2(B = 0)$ eine komplexe Funktion von Variablen ist, die in der SCR-Theorie zum Parametrisieren der Spinfluktuationen (Gl. (2.32)) verwendet wird: $R_2(B)/R_2(B = 0) \propto \sqrt{\frac{\chi_0}{\chi L^{1/3}}} B^{-1/3}$.

Ohne weiterführende Experimente zu den mikroskopischen Parametern können wir die Werte für diese Parameter nicht aus unseren Daten

extrahieren. Dennoch lässt sich bei einem Vergleich der experimentellen Daten für MnSi-Dünnsfilme und Einkristalle schließen, dass die quantitativen Abweichungen auf Unterschiede im Spinfluktuationsspektrum von Dünnsfilm und Einkristall zurückzuführen sind. Werden also die experimentellen Ergebnisse für einkristallines MnSi und Dünnsfilm-MnSi miteinander verglichen, implizieren die quantitativen Unterschiede, dass die Spinfluktuationsspektren in unseren Filmen anders sind als in den Einkristallen. Dieses unterschiedliche Verhalten kann nicht auf die unterschiedlichen Übergangstemperaturen von Film und Einkristall zurückgeführt werden, denn aus der SCR-Theorie für die Abhängigkeit von $R_2(B)/R_2(B=0) \propto \sqrt{T_N^{-1/3}} B^{-1/3}$ würde ein größer werdendes T_N zu einem kleineren Vorfaktor von $R_2(B)/R_2(B=0)$ führen, was nicht unseren Beobachtungen entspricht [12, 16].

4.4. Zusammenfassung

An diesem Punkt ist nicht eindeutig festzuhalten, ob die hier beobachteten Differenzen zwischen Bulk- und Dünnsfilmmaterial MnSi aus den effektiv wirkenden negativen Drücken in dünnen Filmen folgen. Alternativ könnte die in dünnen Filmen induzierte uni-axiale Anisotropie, welche wesentliche Filmeigenschaften beeinflusst [65, 74], für eine Modifizierung der Spinfluktuationsspektren sorgen. Um diesen Aspekt genauer zu beleuchten, liegt es nahe Magnetowiderstandsmessungen unter Druck an MnSi-Dünnsfilm und Einkristallen durchzuführen. Wenn das Druck-Szenario zutrifft, wäre zu erwarten, dass sich durch das Anlegen eines Druckes an einen MnSi-Dünnsfilm die Filmeigenschaften des Magnetowiderstandes Richtung einkristallinem Verhalten verändern.

Zusammengefasst kann bezüglich der Spinfluktuationen im Dünnsfilm und Bulk-Material (Einkristall) MnSi im Rahmen der SCR-Theorie betrachtet werden. Unsere Ergebnisse implizieren, dass sich dünne Filme in einem anderen Spinfluktuationparameterbereich als Bulk-Material (Einkristall) befinden. Die Verknüpfung der Spinfluktuationparameterbereiche zwischen Dünnsfilm und Bulk-Material ist allerdings nicht voll-

ständig verstanden. Das wirft letztlich die Frage auf, ob Dünnsfilm-MnSi wieder auf einer grundlegenderen Ebene untersucht werden sollte, um dieses System im Hinblick auf Skyrmionen-Physik besser zu verstehen.

5. UPt₂Si₂

Im nachfolgenden Kapitel präsentieren wir den Hall-Effekt, Magnetotransport und die Magnetostriktion an einkristallinem UPt₂Si₂ in Magnetfeldern bis 60 T und bei Temperaturen bis zu 50 mK. Ziel ist dabei das Studium verschiedener feldinduzierter Phasen, um somit das magnetische Phasendiagramm für Magnetfelder B entlang der kristallographischen a und c Achse dieses tetragonalen Systems endgültig zu etablieren. Darüber hinaus konnten wir für $B \parallel c$ eine starke Änderung im Hall-Effekt in der Nähe der Phasengrenzen beobachten. Bei einem Vergleich mit Bandstrukturechnungen, die als Grundlage unterschiedliche Lokalisierungsgrade der $5f$ -Elektronen des Urans verwenden, erhärtet sich der Verdacht, dass die entstehende feldinduzierte Änderung der Fermi-Oberflächentopologie einem Lifshitz-Übergang zugeschrieben werden kann. Außerdem haben wir in den Magnetotransport- und Magnetostriktionsdaten eine einzigartige Hysterese, die darauf hinweist, dass der vorgeschlagene Lifshitz-Übergang diskontinuierlicher Natur ist, wie es bei solch wechselwirkenden Elektronensystemen vorhergesagt ist.

5.1. Einführung

Lifshitz-Übergänge sind Quantenphasenübergänge mit einer Änderung der Topologie der Fermi-Oberfläche und werden daher auch als „electronic topological transitions“ (ETTs) bezeichnet. Sie spielen eine zunehmende Rolle in der Physik von korrelierten Elektronensystemen. In diesen wurden bisher eine große Anzahl von unterschiedlichsten feld- und druckinduzierten Phasen (einschließlich unkonventioneller Supraleitung)

gefunden, die nun durch das Phänomen der Lifshitz-Übergänge erweitert werden kann [88–98].

Die grundlegende Theorie der ETTs wurde entwickelt, um die Grundzustandseigenschaften von unterschiedlichen Materialien unter Veränderung eines äußeren Parameters wie bspw. dem Druck zu beschreiben [99, 100]. Sie betrachtet nicht wechselwirkende Elektronen bei dem Temperaturnullpunkt und bringt einen kontinuierlichen Phasenübergang von sog. 2.5 facher Ordnung hervor, ein Wert der den Exponenten im Ehrenfest-Ausdruck in drei Dimensionen reflektiert. In der Folge, basierend auf verschiedenen experimentellen Beobachtungen, konnte der Fall von miteinander wechselwirkenden Elektronen genauer betrachtet werden [101–105]. Die kleinen Energieskalen der dominanten Wechselwirkungsprozesse in stark korrelierenden Elektronensystemen erlauben, durch eine Variation der Energetik (z.B. durch magnetische Felder und Druckunterschiede im Bereich einiger zehn Tesla und Gigapascal), dass EETs erzeugt werden. Dadurch konnte gezeigt werden, dass die Übergänge für wechselwirkende Elektronensysteme grundsätzlich diskontinuierlich sind [101, 102].

Bezüglich einer experimentellen Verifikation von elektronisch topologischen Übergängen gibt es bislang nur wenige Materialien, die eindeutig Lifshitz-Übergänge zeigen. Zur Erweiterung der experimentellen Möglichkeiten wurde daher vorgeschlagen, dass durch ETTs erzeugte Anomalien in verschiedenen Transporteigenschaften beobachtbar sein könnten [100, 106]. Bis zu diesem Zeitpunkt existierten streng genommen ETTs einzig für den Temperaturnullpunkt und schmelzen aus sobald die Temperatur endlich wird. Es ist also eine beachtliche experimentelle Herausforderung einen Lifshitz-artigen Übergang zu identifizieren, wenn man beachtet welche extremen Bedingungen bei tiefen Temperaturen benötigt werden. Außerdem ist die theoretische Bandstrukturbestimmung als Funktion eines äußeren Kontrollparameters für korrelierte Elektronensysteme ebenfalls eine außergewöhnliche Herausforderung.

Im Rahmen dieses Kontextes wird das intermetallische $5f$ -Elektronensystem UPt_2Si_2 betrachtet. Dieses Material gehört zu der großen Klasse der UT_2M_2 -Verbindungen (T = Übergangsmetall; engl. „transition me-

tal“, $M = \text{Si oder Ge}$) und kristallisiert in der tetragonalen CaBe_2Ge_2 Struktur (Raumgruppe $P4/nmm$), wobei die Gitterparameter zu $a = 4.1993(7)$ und $c = 9.6909(93)$ Å bestimmt wurden [107] (vgl. Abb. 5.1).

Ohne Magnetfeld durchläuft es einen antiferromagnetischen (AFM) Übergang bei $T_N = 32$ K. Die magnetische Struktur hat ein Moment von $\mu_{ord} \sim 2.5\mu_B$, wobei diese ferromagnetisch in der ab Ebene und antiferromagnetisch entlang der c Achse koppeln [108, 109] (vgl. Abb. 5.1). Die einfache magnetische Struktur mit großem magnetischen Moment, zusammen mit dem moderat erhöhten elektronischen Anteil in der spezifischen Wärme von $\gamma = 32$ mJ/mol K² wurde als Indikator gesehen, dass es sich bei UPt_2Si_2 um ein seltenes Beispiel für eine intermetallische Uran-Verbindung mit lokalem magnetischem Moment handelt. Dementsprechend wurde ein Kristallfeldschema (CEF / engl. „crystal electric field“) für die $5f^2$ Zustände der Uranionen vorgeschlagen, um die erste Hochfeldmagnetisierungsmessung und die Anisotropie der Suszeptibilität zu beschreiben [110, 111]. Zusätzliche feine Strukturen, die in der Magnetisierung in einem Feldbereich von $\sim 20\text{--}40$ T zu sehen sind, konnten mit dem Konzept des hier gewählten CEF-Schemas bisher nicht erklärt werden. Basierend auf einer weitergehenden Untersuchung bezüglich der Magnetisierung konnte gezeigt werden, dass bei hohen Feldern die experimentellen Daten nicht allein durch das CEF-Modell erklärt werden können. Für magnetische Felder $B \parallel a$ -Achse, abgesehen von der Unterdrückung der AFM-Ordnung, konnte ein hysteretisches Hochfeldregime (~ 40 T) beobachtet werden, dessen Natur bis heute nicht verstanden ist [112, 113] (vgl. Abb. 5.8 unten).

Darüber hinaus zeigen die experimentellen Daten für $B \parallel c$ -Achse oberhalb von 24 T eine deutliche Abweichung von den Vorhersagen des CEF-Modell. Im Detail konnte eine komplexe Serie von feldinduzierten Phasen oberhalb von 24 T beobachtet werden, die nicht allein durch Spinreorientierungsprozessen und/oder Kristallfeldeffekten erklärt werden können [110–113]. Als eine Alternative zu dem CEF-Modell schlagen wir ein itinerantes Bild der Eigenschaften von UPt_2Si_2 vor, dieses Bild wird durch vorangegangene Bandstrukturrechnungen gestützt [114]. Darüber hinaus unterstreichen solche Berechnungen die Relevanz von Korrelationseffekten in diesem System [114, 115]. Es zeigt sich, dass der generelle

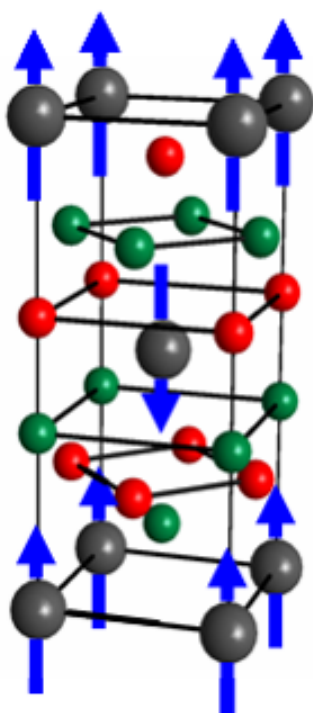


Abbildung 5.1.: Kristallstruktur von UPt_2Si_2 . Die tetragonale Struktur wird durch folgende Elemente aufgebaut: Uran in schwarz, Platin in rot und Silicium in grün. Die magnetischen Momente sind bei den Uran-Atomen lokalisiert und zeigen entlang der kristallographischen c -Achse (senkrecht zur a - b -Ebene); für Details siehe Text.

Charakter der Bandstruktur als „quasi-zweidimensional“ angesehen werden kann, was aus der vergleichsweise geringen Kristallsymmetrie folgt. Dieser zweidimensionale Charakter spiegelt sich ebenfalls in der hohen Anisotropie im spezifischen Widerstandes von UPt_2Si_2 wieder [109].

In Ref. [112] wurde argumentiert, dass die Beobachtung der feldinduzierten Phasen in UPt_2Si_2 Lifshitz-artigen Phasenübergängen zugeschrieben werden können. Um diese Aussage hinsichtlich UPt_2Si_2 zu überprüfen, sind Messmethoden notwendig, die direkt die Fermi-Oberfläche bei tiefen Temperaturen vermessen und die Ordnung (kontinuierlich/diskontinuierlich) der Phasenübergänge bestimmen. Eine Vermessung der Fermi-Oberfläche durch Quantenoszillationen kann bei UPt_2Si_2 nicht durchgeführt werden, da diese Quantenoszillationen durch die intrinsische strukturelle Unordnung durch verspannte Pt(2)/Si(2) Lagen im CaBe_2Ge_2 -Gitter unterdrückt werden [109]. Aus diesem Grund werden integralere und weniger unordnungsabhängige Methoden zur Messung der Fermi-Oberfläche herangezogen, um das Lifshitz-Szenario für UPt_2Si_2 zu überprüfen. Zusätzlich kann die Ordnung der Phasenübergänge über die Untersuchung der feldabhängigen strukturellen Eigenschaften bestimmt werden. Dadurch wird es möglich in Verbindung mit Bandstrukturrechnungen die Natur der feldinduzierten Phasen in UPt_2Si_2 zu verstehen.

Vor diesem Hintergrund haben wir UPt_2Si_2 unter extremen Bedingungen untersucht. Das beinhaltet die Untersuchung des Hall-Effektes, des Magnetotransportes und der Magnetostriktion bei tiefen Temperaturen bis runter zu 50 mK und Magnetfeldern bis 60 T. Unsere Experimente zeigen deutlich, dass sich die FS in hohen Feldern ändert. Diese Untersuchungen werden durch Bandstrukturrechnungen vervollständigt, die von einem dualen Charakter der Uran 5*f*-Elektronen ausgehen und zeigen, wie sich die Topologie der Bandstruktur unter extern angelegten Magnetfeldern verhält. Bei dem „dualen Modell“ werden zwei der 5*f*-Elektronen als lokalisiert angenommen und eines als itinerant/delokalisiert. Diese theoretische Betrachtungsweise konnte bereits erfolgreich auf UPt_3 [116] und UPd_2Al_3 [117] angewendet werden. Als ein Ergebnis dieser Berechnungen konnte bestätigt werden, dass hohe Magnetfelder in UPt_2Si_2 Lifshitz-artige Phasenübergänge induzieren können.

5.2. Experimentelle Umsetzung

Die hier präsentierten Experimente wurden an einkristallinem UPt_2Si_2 durchgeführt, wobei die Proben aus dem gezogenen Kristall in eine stäbchenartige Form mit einer Querschnittsfläche von $\sim 1 \times 1 \text{ mm}^2$ und einer Länge von einigen Millimetern gesägt wurden. Das Material des selben Einkristalls wurden in den Referenzen [109, 112, 113, 118] umfassend charakterisiert.

Die Untersuchungen der elektrischen Transporteigenschaften wurden am Laboratoire National des Champs Magnétiques Intenses in dc-Feldern bis 34 T entlang der a - und c -Achse durchgeführt. Das Experiment selbst wurde dabei in einem Mischkryostaten installiert. Die Daten wurden mit einer Standard lock-in-Technik mit einem kleinen Signal-Rausch-Verhältnis durchgeführt, wobei ein Probenstrom von 1 mA entlang der a -Achse angelegt wurde. Dadurch konnte eine Gleichgewichtstemperatur von 120 mK erreicht werden. Um tiefere Temperaturen von 50 mK zu erreichen, war es nötig einen niedrigeren Probenstrom zu verwenden. So wurde der Zugang zu einem weiten Bereich des Feld/Temperatur-Phasendiagramms bis zu einem B/T -Verhältnis von 700 T/K ermöglicht.

Die Probe wurde auf einen drehbaren Probenhalter fixiert und thermisch an das Heliumgemisch gekoppelt. Für die elektrische Kontaktierung wurden bis zu 10 Drähte in unterschiedlicher Konfiguration mit Silberleitlack auf die Probenoberfläche geklebt, wodurch simultane Messungen des transversalen spezifischen Magnetowiderstandes und des Hall-Effektes bei der jeweiligen Feldrichtung ermöglicht wurden. In einem zweiten Durchlauf an Experimenten wurde der selbe Aufbau verwendet, nur dieses Mal mit einer longitudinalen Magnetowiderstandskonfiguration. Die Messungen der axialen Magnetostriktion wurden im Los Alamos High Field Laboratory in gepulsten Feldern bis 60 T ebenfalls entlang der a - und c -Achse von M. Jaime durchgeführt. In diesem Fall war die tiefste Temperatur 1.4 K und für das Experiment wurde ein optisches Fiberglas mit Bragg-Markern, wie in Ref. [119, 120] beschrieben, verwendet.

5.3. Ergebnisse und Diskussion

Für Felder $B \parallel a$ -Achse bis 34 T und tiefen T zeigt der Hall-Widerstand ρ_{xy} ein lineares Verhalten mit dem Magnetfeld B (Abb. 5.2(a)). In diesem Feldbereich gibt es keine Phasenübergänge, was konsistent mit den Ergebnissen aus Ref. [112] ist. In Abb. 5.2 werden ebenfalls die Hall-Effekt Daten für $B \parallel c$ -Achse bis 34 T gezeigt und mit den Tieftemperaturdaten in Abb. 5.3 zusammengefasst. Für Felder bis 23 T, entsprechend der AFM Phase I, steigt ρ_{xy} linear mit dem Feld [112]. Bei der Phasengrenze I-III ist eine ausgeprägte Krümmung nach oben in $\rho_{xy}(B)$ zu sehen, welche wiederum linear in Phase III wird. An der Phasengrenze III-V ist nun eine ausgeprägte Krümmung nach unten in ρ_{xy} . Unter Berücksichtigung der experimentell bedingten Streuung ist keine Hysterese zwischen field-up- und field-down-sweep-Messungen beobachtbar. Außerdem ist keine Temperaturabhängigkeit im Bereich unterhalb 2 K zu beobachten. Qualitativ erinnert dieses Verhalten an das von Rh-dotiertem URu_2Si_2 [121].

Zur Parametrisierung der Daten wurde der Hall-Effekt durch den Ausdruck $\rho_{xy} = R_H B$ gefittet. Damit ergibt sich in Phase I für $B \parallel a$ -Achse ein Hall-Koeffizient von $R_H = 1.7 \times 10^{-9} \text{ m}^3/\text{C}$ (durchgezogene Linie in Abb. 5.2). Dementsprechend ergeben sich für $B \parallel c$ -Achse für den linearen Bereich von 0 bis 23 und 25 bis 32 T jeweils die Hall-Koeffizienten $R_H = 3.6 \times 10^{-8} \text{ m}^3/\text{C}$ und $R_H = 5.7 \times 10^{-8} \text{ m}^3/\text{C}$. Insgesamt sind diese Werte konsistent mit dem für Schwer-Fermionen-artigen Verbindungen typischen Verhalten. Wir beobachten, dass, obwohl sich das System für $B \parallel c$ -Achse bei dem höchsten Feld von 34 T in Phase V befindet (was aus den Beobachtungen der Hysterese im Magnetowiderstand hervorgeht; siehe unten), der Hall-Effekt ein nicht-monotones Verhalten in diesem Feldbereich zeigt. Der Grund für dieses ungewöhnliche Verhalten ist nicht klar und es bedarf weiterer Untersuchungen bei noch höheren Feldern, um dieses Verhalten (besser) zu verstehen.

In magnetischen Materialien lässt sich der Hall-Effekt in zwei Bestandteile zerlegen. Der normale Anteil $\rho_{xy}^{nor} = R_N B$ misst die Ladungsträgerdichte n in Einheiten der Elektronenladung e : $R_N = (ne)^{-1}$.

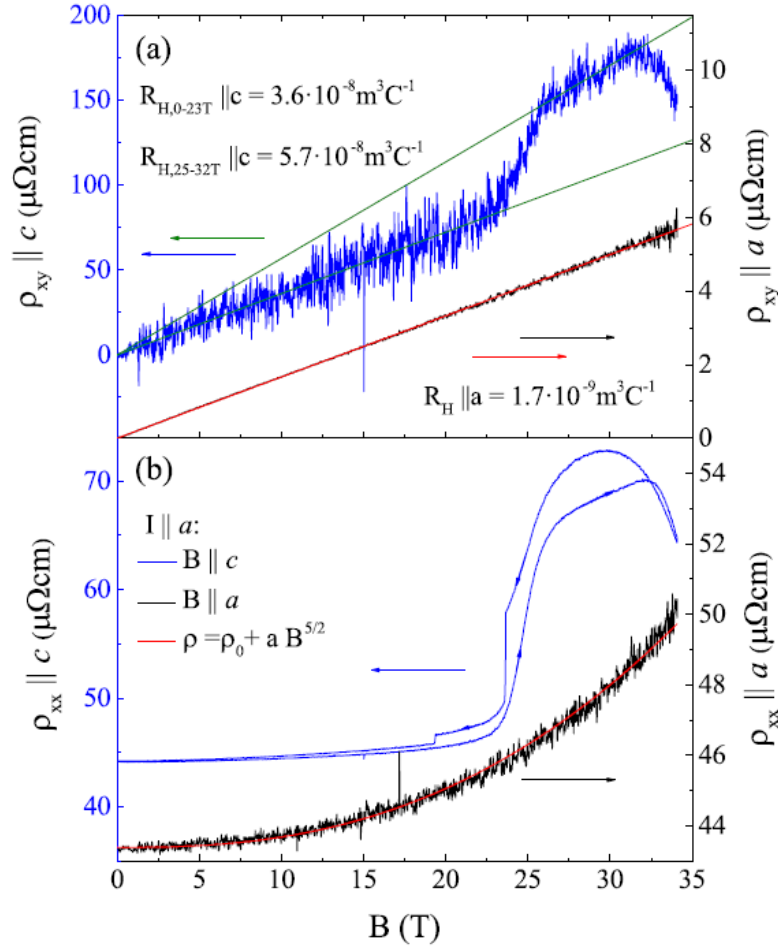


Abbildung 5.2.: Vergleichende Auftragung des (a) Hall-Widerstandes ρ_{xy} bei $T = 300$ mK für $B \parallel a$ -Achse und 130 mK für $B \parallel c$ -Achse zusammen mit den zugehörigen Fits und (b) des transversalen Magnetowiderstandes von UPt_2Si_2 bei $T = 300$ mK für $B \parallel a$ -Achse und 120 mK für $B \parallel c$ -Achse; für Details siehe Text.

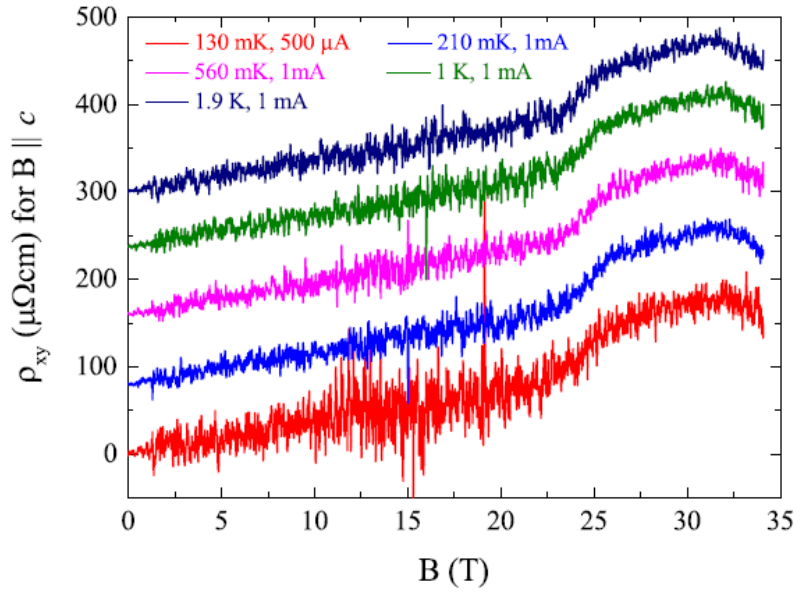


Abbildung 5.3.: Hall-Widerstand ρ_{xy} von UPt_2Si_2 bei verschiedenen Temperaturen für $B \parallel c$ -Achse. Die Daten wurden zur Übersichtlichkeit entlang der ρ_{xy} -Achse geschiftet; für Details siehe Text.

Der anomale Hall-Anteil ρ_{xy}^{ano} reflektiert Abhängigkeiten des Koeffizienten vom spezifischen Widerstand und/oder der Magnetisierung (vgl. Ref. [111–113]). Um den anomalen Hall-Effekt also besser zu verstehen, wurden zu den Daten, die in Ref. [112] veröffentlicht wurden, weitere Tieftemperatur-Magnetowiderstandsdaten gemessen (vgl. Abb. 5.2(b) und 5.4). Im Magnetowiderstand bei tiefsten Temperaturen für $B \parallel a$ -Achse bis 34 T sind im monotonen Anstieg keine Anomalien zu identifizieren, und mit $\rho_{xx}(B) = \rho_{xx}(B = 0) + aB^{\frac{5}{2}}$ konnte ein guter Fit der Daten erreicht werden. Wie bereits beim Hall-Effekt und entsprechend Ref. [112] ist auch hier kein Hinweis für einen Phasenübergang im betrachteten Feldintervall zu erkennen.

Im Gegensatz zu den Messungen für $B \parallel a$ -Achse reflektieren ausgeprägte Anomalien im Magnetowiderstand für $B \parallel c$ -Achse die Phasenübergänge von Phase I nach III und III nach V. Der Übergang von I \rightarrow III führt einen sprunghaftigen Anstieg des Magnetowiderstandes mit sich, wobei der Mittelpunkt des Sprunges nahe des Feldes ist, bei dem mittels

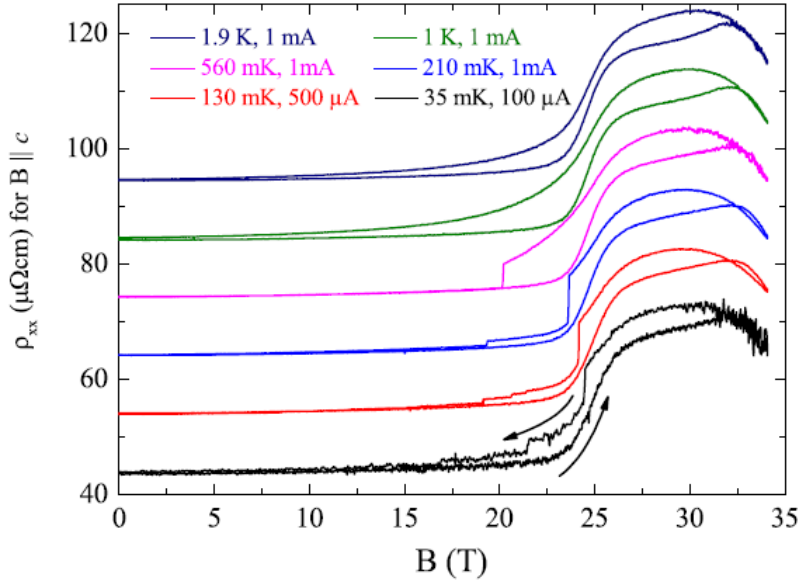


Abbildung 5.4.: Transversaler Magnetowiderstand von UPt_2Si_2 bei verschiedenen Temperaturen für $B \parallel c$ -Achse; für Details siehe Text.

Magnetisierung ein Phasenübergang bestimmt wurde. Im Gegensatz dazu zeigt der Übergang $III \rightarrow V$ einen entsprechenden Abfall des Magnetowiderstandes.

Überraschenderweise wird der Magnetowiderstand für $B \parallel c$ -Achse von einer ungewöhnlichen Hysterese begleitet (vgl. Abb. 5.2(a), 5.4 und 5.5). Wird $\rho_{xx}(B)$ während eines Feld-sweeps vom Nullfeld in Phase V gemessen und anschließend mit $\rho_{xx}(B)$ beim down-sweep verglichen, kommt es zu einer Hysterese im Magnetowiderstand. Wenn im Gegensatz dazu ein Magnetfeld-sweep nur bis in Phase III und zurück durchgeführt wird, ist in $\rho_{xx}(B)$ bei tiefen T keine Hysterese zu erkennen.

Um die Magnetfeld-sweep bedingte Hysterese genauer herauszuarbeiten wurde der longitudinale Magnetowiderstand ($B \parallel c \parallel I$) bei tiefen Temperaturen gemessen und in Abb. 5.4 dargestellt. Hierbei wurde für verschiedene Temperaturen unterhalb 1 K zuerst das Feld bis in Phase III gefahren (bis 30 T) und anschließend zurück zum Nullfeld. Bei diesen Messsequenzen wurde keine Hysterese im Magnetowiderstand beobachtet. Wurde das Feld unter denselben Voraussetzungen bis in Phase V

gefahren (bis 35 T), ist die oben erwähnte Hysterese zwischen field-up-sweep und field-down-sweep zu sehen. Diese Beobachtung beweist, dass es sich bei dem Phasenübergang zwischen Phase III und V um einen ersten Ordnungs-Phasenübergang handelt. Diese Beobachtung ist darüber hinaus konsistent mit den Untersuchungen des Magnetowiderstandes von Ref. [112], bei denen das Magnetfeld mit 28 T bis in Phase III gefahren wurde und keine Hysterese beobachtet werden konnte.

Betrachtet man in diesem Zusammenhang den anomalen Beitrag des Hall-Effektes ρ_{xy}^{ano} , impliziert die Abwesenheit der Hysterese im Hall-Effekt und ihr Vorkommen im Magnetowiderstand (Abb. 5.2), dass ρ_{xy}^{ano} nicht von $\rho_{xx}(B)$ abhängt. Demnach könnte der ausgeprägte Anstieg in ρ_{xy} bei der Phasengrenze I-III einem entsprechenden Anstieg in der Magnetisierung M zugeschrieben werden (siehe Abb. [111–113]). Dagegen ist bei der Phasengrenze III-V im ρ_{xy} ein Abfall zu verzeichnen, wogegen die Magnetisierung M an dieser Stelle einen erneuten Anstieg zeigt. Dieses Verhalten impliziert, dass dieser Phasenübergang mit einer Änderung der Ladungsträgerdichte einhergeht, was durch eine Änderung der Fermi-Oberfläche verursacht werden könnte, wie es bei einer ETT der Fall wäre.

Um die Untersuchungen an UPt_2Si_2 zu vervollständigen wurde das strukturelle Verhalten durch axiale Magnetostruktionsmessungen, welche in Abb. 5.6 dargestellt sind, erweitert. Für $B \parallel a$ -Achse beobachten wir eine Kontraktion der Probe. Darüber hinaus ist eine leichte Änderung der Steigung mit steigendem Magnetfeld zu verzeichnen und eine Hysterese taucht in dem Temperatur-/Magnetfeldbereich auf, in der sie auch in der Magnetisierung zu sehen ist. Das hysteretische Verhalten deutet auf den Übergang zwischen Phase I und dem paramagnetischen Regime hin.

Für $B \parallel c$ -Achse expandiert der UPt_2Si_2 Kristall bis zu einem Feld von ~ 40 T und die Magnetostruktion sättigt anschließend bei höheren Feldern. Die feldinduzierten Phasenübergänge können als zusätzliche Struktur in der Magnetostruktion identifiziert werden. Ähnlich wie in der Magnetisierung bei tiefen Temperaturen existiert eine Doppelstruktur in den Daten, die einen Übergang von Phase I zu III und letztlich in Phase

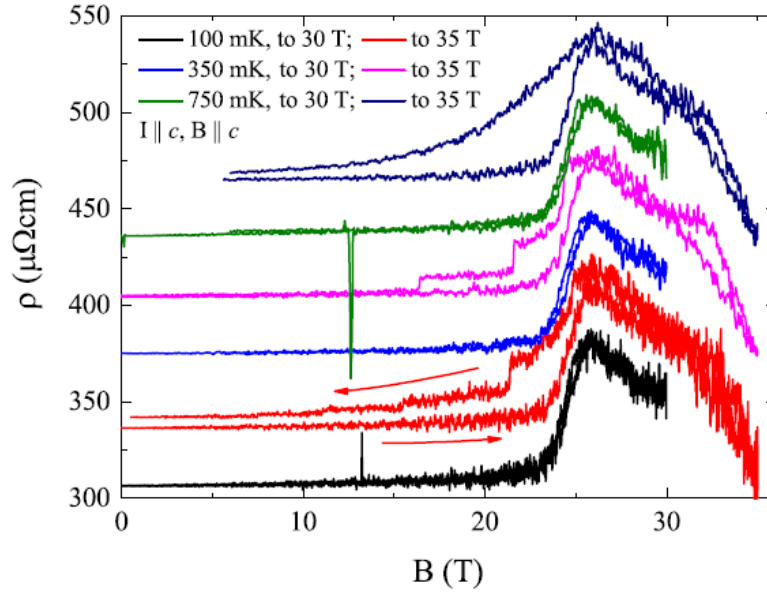


Abbildung 5.5.: Longitudinaler Magnetowiderstand von UPt_2Si_2 bei verschiedenen Temperaturen für $B \parallel c$ -Achse für Magnetfeldmessungen in Phase III (30 T) und zurück zum Nullfeld oder in Phase V (35 T) und zurück; für Details siehe Text.

V reflektieren. Das kritische Feld der verschiedenen Phasen wurde aus den Punkten mit der maximalen Steigung der field-sweep-up Messungen entnommen.

Wie bei dem Magnetowiderstand taucht in der Magnetostruktion eine Magnetfeld-sweep bedingte Hysterese bei tiefen T auf (Abb. 5.7): Für Feldänderungen vom Nullfeld bis in Phase III und zurück kann keine Hysterese beobachtet werden. Wenn das Feld letztendlich wieder in Phase V und anschließend zum Nullfeld zurückgefahren wird, taucht eine strukturelle Hysterese auf. Diese strukturelle Hysterese unterstützt die Idee, dass es sich bei dem Phasenübergang III-V um einen Übergang erster Ordnung handelt. Mit den präsentierten Daten wurden die Hochfelduntersuchungen zu UPt_2Si_2 vervollständigt. Zusammen mit den Daten aus Ref. [112] wurde das magnetische Phasendiagramm von UPt_2Si_2 für $B \parallel a$ und c -Achse in Abb. 5.8 erstellt. Die neuen Daten bestätigen die essentiellen Ergebnisse aus Ref. [112]. Im einzelnen bestätigen die Magnetostruktionsdaten für $B \parallel a$ -Achse die Phasengrenzen zwischen

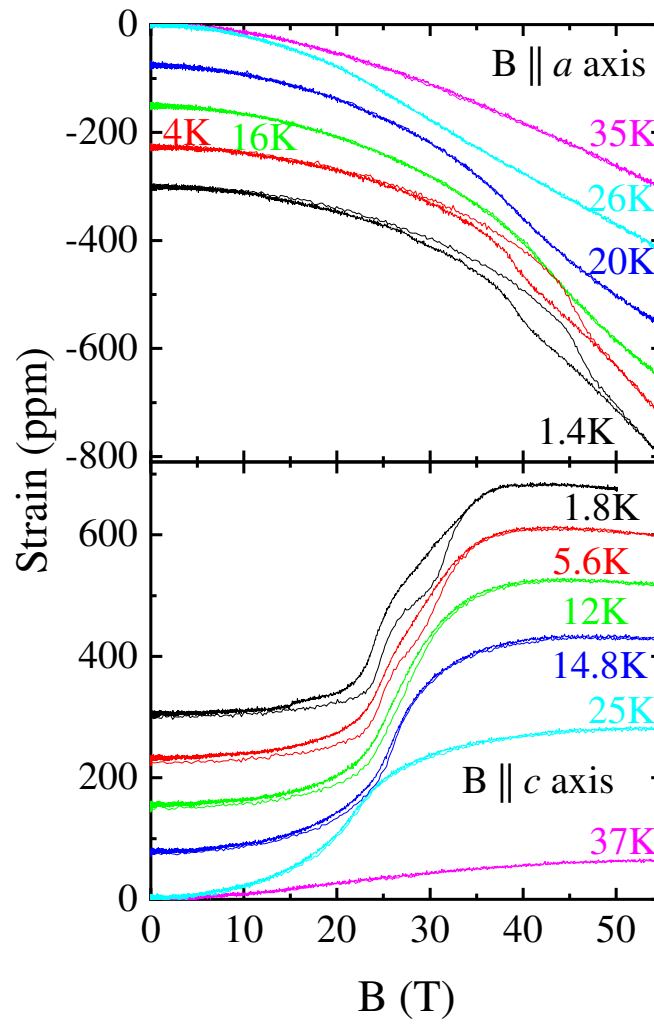


Abbildung 5.6.: Axiale Magnetostraktion von UPt_2Si_2 für Magnetfelder $B \parallel a$ und c -Achse bis 55 T für unterschiedliche Temperaturen. Die Daten wurden zur Übersichtlichkeit entlang der y -Achse geshiftet; für Details siehe Text.

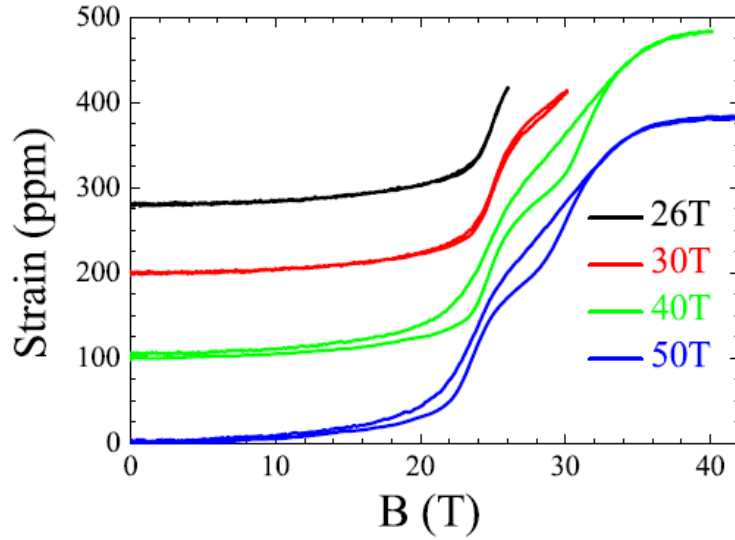


Abbildung 5.7.: Axiale Magnetostraktion von UPt_2Si_2 für Magnetfelder $B \parallel c$ -Achse bei 1.8 K. Die Daten wurden zur Übersichtlichkeit entlang der y-Achse geschiftet. Diese Auftragung illustriert die Abwesenheit, bzw. das Erscheinen einer strukturellen Hysterese, wenn die Felder in Phase III, bzw. in Phase V gefahren werden. Dabei beschreibt die Legende die jeweils höchsten erreichten Felder während eines Sweeps; für Details siehe Text.

der AFM Phase I in das hysteretischen Regime II und den paramagnetischen Bereich. Darüber hinaus konnten die Daten für den mittleren Temperaturbereich $\sim 20 - 30$ K die Phasengrenze besser lokalisieren als es mit den bisherigen Daten aus Ref. [112] möglich war. Für $B \parallel c$ -Achse bei tiefen Temperaturen konnten die Phasengrenzen zwischen Phase I, III und V mit den neuen Daten reproduziert werden. Darüber hinaus ist die Existenz der Phasengrenzen bis in den Millikelvin-Bereich bestätigt und erweitert worden. Ferner können die neuen Daten den mittleren Temperaturbereich zwischen $\sim 10 - 25$ K genauer abdecken und damit die Kenntnis des Phasendiagramms für den gesamten Bereich erweitert werden.

Wie bereits in Ref. [112] angemerkt, glauben wir, dass es eine zusätzliche Phase bei hohen Magnetfeldedern wurde zwischen den parama-

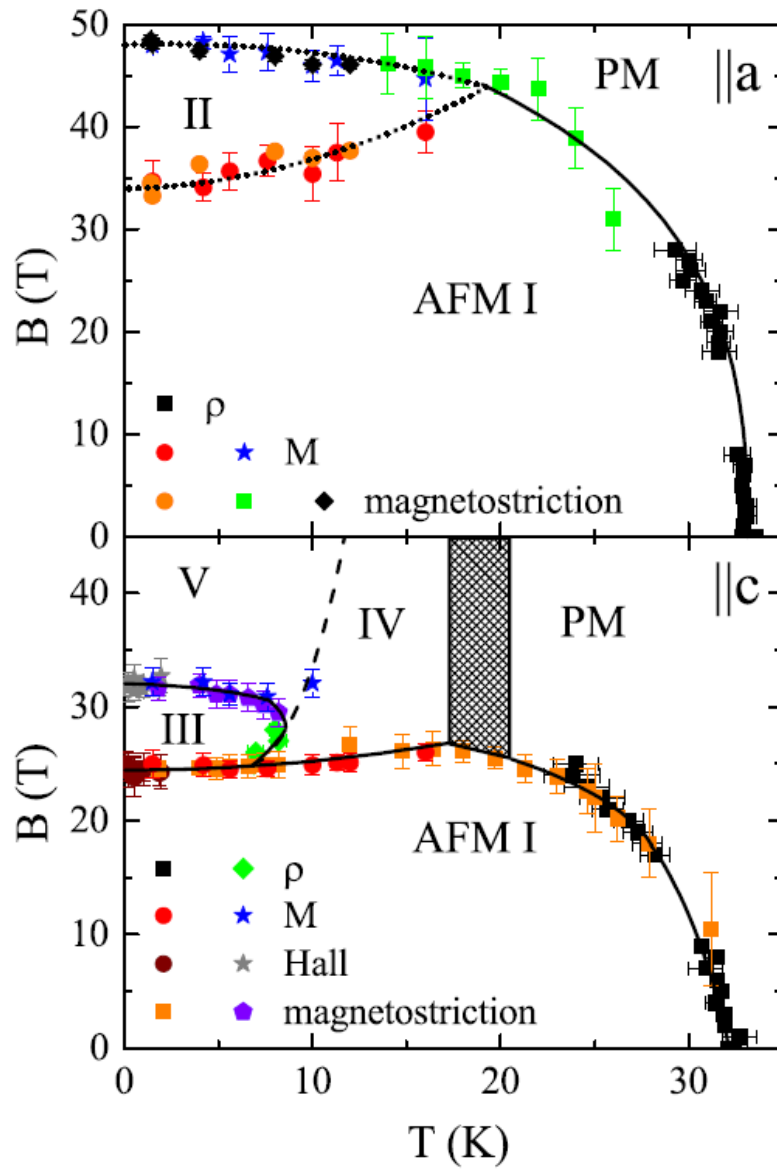


Abbildung 5.8.: Das magnetische Phasendiagramm von UPt_2Si_2 für Magnetfelder $B \parallel a$ und c -Achse kombiniert aus den hier vorgestellten Daten und denjenigen, die in Ref. [112] präsentiert wurden. für Details siehe Text.

netischen Regime, Phase IV und zwischen Phase IV und III/V geben muss. Diese Idee basiert auf einer qualitativen Änderung im feldabhängigen Charakter der Magnetisierung (siehe Abb. 1 mit $B \parallel c$ -Achse in Ref. [112]). Dort zeigt die Magnetisierung bei 20 K und höher ein monotones „Brillouinfunktionsartiges“ Verhalten in Abhängigkeit vom Magnetfeld, während für die Daten von 16 K und darunter ein hysteretischer metamagnetischer Übergang bei circa 25 T auftritt. Aus diesem Grund muss der metamagnetische Übergang in eine Phase gehen, die unterschiedlich zum paramagnetischen Regime ist, also in Phase IV. So zeigt die Magnetisierung in einem Temperaturbereich von $\sim 10 - 16$ K einen metamagnetischen Übergang und für Temperaturen von 10 K und niedriger tritt ein zweistufiger Übergang auf (das gleiche Verhalten wurde in der Magnetostriktion beobachtet; siehe oben). Mit der selben Argumentationskette kann daraus folglich geschlossen werden, dass dieser Übergang bei tiefen Temperaturen auf eine neue Phase V schließen lässt.

Aus den vorangegangenen Daten konnte nur grob die Position dieser Phasengrenzenlinien und dem daraus folgenden trikritischen Punkt bestimmt werden. Mit unseren Magnetostriktionsdaten kann die Entwicklung der Phasengrenzenlinien präziser definiert werden, wie es in Abb. 5.8 zu sehen ist. Auffällig dabei ist, dass mit den neuen Daten für $B \parallel c$ -Achse die Phasengrenzlinie der Phase I ein Maximum bei ~ 20 K/25 T besitzt. Dieses Verhalten ist höchst ungewöhnlich für einen klassischen Antiferromagnet. Das legt nahe, dass dies durch das Hochfeldverhalten mit Phase IV hervorgerufen wird. Damit sind die neuen Daten vollständig konsistent mit dem Phasendiagrammszenario „A“ in Ref. [112]. In diesem Szenario gehen wir davon aus, dass der trikritische Punkt bei etwa 25 T und 19 K liegt. Unglücklicherweise zeigt auch eine genauere Betrachtung der Daten durch die unterschiedlichen Messmethoden keine hinreichend signifikanten Anzeichen, um den trikritischen Punkt genauer zu spezifizieren. Somit ist die Entwicklung der Grenze zwischen Phase IV und V weiterhin undurchsichtig und im Umfeld des trikritischen Punktes III-IV-V versteckt.

5.4. Bandstrukturechnungen

Durch die experimentellen Untersuchungen an UPt_2Si_2 konnte ein komplexes magnetisches Phasendiagramm erstellt werden. Um die bisherigen Anzeichen für Lifshitz-artige Übergänge zu untermauern, wurden zusätzlich Bandstrukturechnungen von Z. Çakir und G. Zwicknagl durchgeführt. Da die Ergebnisse der Bandstrukturechnungen die experimentellen Daten unterstützen, sollen diese hier kurz dargestellt werden, auch wenn die Durchführung der Rechnungen nicht Bestandteil dieser Arbeit sind. Die in diesem Abschnitt präsentierten Rechnungen, Ergebnisse und Vorgehensweise basieren auf der Diplomarbeit von Z. Çakir [122], die zusammengefasst ebenfalls in Ref. [123] verarbeitet sind.

Für $B \parallel c$ -Achse sind die experimentellen Hinweise konsistent mit der Idee, dass es sich bei dem Übergang in Phase V um einen ETT in einem korrelierten Elektronensystem handelt. Es liegt eine signifikante Änderung des Hall-Koeffizienten beim III-V Übergang für $B \parallel c$ -Achse vor, die mit einem Lifshitz-artigen Charakter einhergeht. Zusätzlich ist der erste Ordnungs-Phasenübergang an dieser Stelle konsistent mit dem für untereinander wechselwirkende Elektronensysteme. Als nächster Schritt wurden, basierend auf Ref. [114], weitere Rechnungen durchgeführt, um zu überprüfen ob eine ETT auftreten kann, denn aus den Ergebnissen von Ref. [114] allein, kann diesbezüglich keine Aussage getroffen werden.

Bei einem ETT resultieren die topologischen Änderungen der Isoenergieflächen der Fermi-Oberfläche aus kritischen Punkten in der Banddispersion, wie zum Beispiel Minima, Sattelpunkte und Maxima, welche durch Van Hove Singularitäten in der Zustandsdichte entstehen. Die Änderungen der Topologie der Isoenergieflächen beinhalten das Entstehen von Höhlen, das Verschwinden von kleinen Taschen und das Aufbrechen von Hälsen auf der Fermi-Oberfläche. Aus diesem Grund liegt der Fokus der vorliegenden Berechnungen auf den kritischen Punkten in der Quasiteilchendisposition von UPt_2Si_2 . Für magnetfeldinduzierte Lifshitz-Übergänge müssen die kritischen Punkte nahe der Fermi-Energie liegen.

Es wird also nach dem Auftreten der erwähnten Taschen, Höhlen oder Hälsen in der Bandstruktur gesucht.

Die vorliegenden Berechnungen gehen von itineranten $5f$ -Elektronen aus, die teilweise gefüllte kohärente Bänder bilden. Es werden dabei die Fermi-Oberfläche analysiert, wobei die Energiebänder, unter der folgenden Annahme für die Natur der $5f$ -Elektronen, berechnet wurden: Gestartet wird mittels Dichtefunktionaltheorie und allen $5f$ -Elektronen als Bandzuständen. Dieses Approximationsschema kann die Korrelationseffekte nicht vollständig beschreiben. Um diese zu berücksichtigen, wurde die Bandstruktur berechnet unter der Annahme, dass zwei der $5f$ -Elektronen als lokalisiert und eines als itinerant und mit dem Leitungsband hybridisierend vorliegen. Zur Vereinfachung wurden erst alle $5f$ -Kanäle als äquivalent gesetzt und erst im zweiten Schritt für die orbitale Auswahl freigelassen. Als letzten Schritt wurde das $5f$ -Elektron im $j = 5/2$, $j_z = \pm 1/2$ -Kanal als hybridisiertes Elektron gesetzt. Dabei wurden die Bandstrukturen mit der vollständig relativistischen Formulierung der linear muffin-tin orbital (LMTO) Methode bestimmt [124–127]. Die Spin-Orbit-Wechselwirkung wird vollständig berücksichtigt, indem die Dirac-Gleichung gelöst wird. Die Ergebnisse wurden mit den relativistischen Berechnungen von Elgazzar et al. [114] verglichen.

Da die Schwer-Fermionen-Verbindung UPt_2Si_2 in der tetragonalen $CaBe_2Ge_2$ -Struktur kristallisiert, ist die Kristallstruktur vergleichsweise offen, was dazu führt, dass die „atomic-sphere approximation“ (ASA) keine ausreichende Beschreibung der elektronischen Bandstruktur liefert. Die kombinierten Korrekturterme, welche die relevanten Korrekturen zur ASA enthalten, verändern die Leitungsbänder auf charakteristische Art und Weise und können daher nicht vernachlässigt werden. Austausch- und Korrelationseffekte werden durch die Verwendung des Barth-Hedin Potentials eingeführt [128]. Die Bandstruktur wurde für 405 k Punkte in einen nicht reduzierbaren Keil konvergiert, welcher vom Volumen $1/16$ der Brillouinzone entspricht. Die Zustandsdichte „density of states“ (DOS) wurde durch die Verwendung der „tetrahedron“-Methode, mit linearer Interpolation für die Energien, bestimmt [129, 130]. Die DOS des Leitungsbandes wurde mit 0.25 mRy (≈ 0.0034 eV) Intervallen berechnet.

Das effektive Potential, dass durch die Leitungszustände gesehen wird, wurde näherungsweise durch eine Überlagerung von Beiträgen konstruiert, die sphärische Symmetrie innerhalb der atomaren Sphären besitzen, beziehungsweise durch „leere“ Sphären, die von Gitter- oder Zwischenplätzen umgeben sind. Die leeren Sphären sollten als Hilfskonstruktionen gesehen werden, welche eine verbesserte Beschreibung der Elektronendichte sowie des Potentials im Kontext der ASA bietet. In UPt_2Si_2 ist der dominante Beitrag zur Ladung durch die Zwischenplätze, welche von den Pt d -Zuständen kommen, gegeben. Die Berechnungen wurden mit den experimentell bestimmten Gitterparametern durchgeführt und entsprechen nicht der Gleichgewichtsgeometrie aus einer „local-density approximation“ (LDA)-Berechnung. Die bestimmte Gesamtenergie der experimentellen Struktur wird deshalb den theoretischen Wert unterschreiten. Diese Schwierigkeit, welche generell bei Metallen mit stark korrelierenden Elektronen entsteht, ist eine direkte Konsequenz der LDA-Beschreibung von solchen Systemen im Kontext eines Einteilchenbildes. Das kann beobachtet werden, wenn zwei Grenzfälle berücksichtigt werden: Als erstes, wenn man die f -Elektronen als Teil eines Ionenkerns annimmt, impliziert dies, dass ihr Beitrag zur Bindung vernachlässigbar ist. Als eine Konsequenz davon werden die Gleichgewichtswerte der Gitterparameter oft überbestimmt. Zweitens, wenn die f -Elektronen als Bandelektronen beschrieben werden, ergibt sich ein teilweise gefülltes f -Band in der Nähe der Fermi-Energie. Die bestimmte LDA-DOS an der Fermi-Energie ist groß verglichen mit denen von herkömmlichen Metallen.

Eine effektive Einteilchenbeschreibung, wie in der LDA bringt eine elektronische Kompressibilität hervor, die erhöht ist gegenüber herkömmlichen Metallen mit dem selben Faktor. Das Verhalten welches für unabhängige Fermionen erwartet wird, steht im Gegensatz zum Experiment, welches Werte für die Kompressibilität der Schwer-Fermionen liefert, die mit herkömmlichen Metallen verglichen werden können. Die durch die LDA vorausgesagte große elektronische Kompressibilität verursacht fälschlicherweise ein „overbinding“ (d.h. die theoretischen Werte der Gleichgewichtsgitterkonstanten sind zu klein). Es ist eine direkte Folgerung des Fehlers aus dem unabhängige-Teilchen-Bild.

Zwei separate LMTO Berechnungen wurden angewendet, um die Uran- $6p$ -Zustände und der entsprechenden Leitungsbänder unter Berücksichtigung der Selbstkonsistenz zu bestimmen. Wenn die U- $6p$ -Zustände als Bandzustände angenommen werden, sorgt das für einen kleinen Überlapp der entsprechenden Kernzustände. Die resultierenden schmalen Bänder weit unterhalb der Fermi-Energie hybridisieren nur sehr schwach mit dem Leitungsband. Diese Hybridisierung in der angewendeten Methode wird im weiteren Verlauf vernachlässigt, aber der Einfluss auf die Form des Potentials weiterhin berücksichtigt. Die Ladungsverteilung der anderen Kernzustände werden aus den atomaren Berechnungen entnommen und werden während des iterativen Prozesses festgehalten. Für die niedrigeren Ebenen wurden die $s - p - d$ -Winkelmomentkomponenten an der Basis der U- und Pt-Stellen und $s - p$ -Komponenten an den Si- und Zwischenplätzen mit einbezogen. Für die höheren Ebenen werden die $s - p - d - f$ -Komponenten an den U-Stellen und $s - p - d$ für die übrigen Stellen mit einbezogen.

Die erhaltenen Fermi-Oberflächen mit den drei Näherungen bezüglich der Lokalisierung der $5f$ -Elektronen sind in Abb. 5.9 zusammengefasst. Es werden vier Bänder gefunden, die die Fermi-Energie kreuzen, die zugehörigen FS-Schichten werden als 1, 2, 3 und 4 bezeichnet. Global betrachtet führen die LDA Rechnungen zu Ergebnissen, die in guter Übereinstimmung mit denen von Elgazzar et al. [114] sind. Einzige Ausnahme ist, dass in der hiesigen Schicht 1 keine Appendices auftreten (vgl. dazu Ref. [114], Abb. 8, „band 113“). In Bezug zu der FS-Topologie stellt sich heraus, dass FS-Schicht 3 und 4 höchst unempfindlich auf eine Veränderung der $5f$ -Zustände reagieren. Die Anzahl der itineranten $5f$ -Elektronen beeinflussen lediglich die Schichten 1 und 2. Dementsprechend wurde bei diesen Schichten die Reaktion auf Magnetfelder betrachtet, indem die Isoenergieflächen betrachtet werden, wenn sie um eine kleine Energie von 6 meV verschoben werden. Für ein magnetisches Moment von $\sim 2.5\mu_B$ wie bei UPt_2Si_2 entspricht dieser Wert einem Magnetfeld von ~ 30 T.

Besonders für Schicht 2 können qualitative Änderungen der FS-Form für solch kleine Energieänderungen gefunden werden, was einen Beweis für das mögliche Auftreten einer ETT auf Basis von Bandstrukturech-

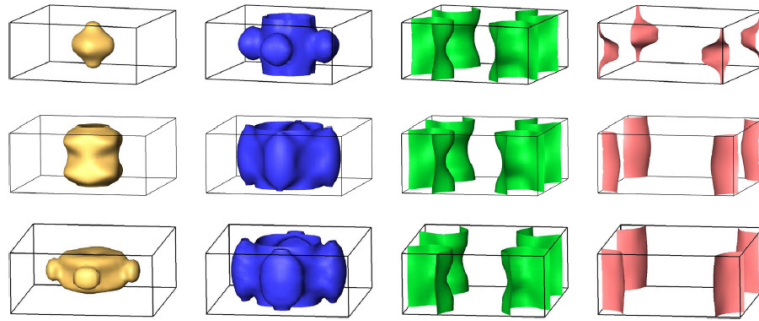


Abbildung 5.9.: Berechnete Fermi-Oberflächen von UPt_2Si_2 in der paramagnetischen Phase. Oben: LDA Berechnung, wobei alle $5f$ -Elektronen als itinerante Bandelekttronen angenommen werden. Mitte: zwei der $5f$ -Elektronen werden als Teil des Ionenkernes angenommen und ein $5f$ -Elektron hybridisiert mit den Leitungselektronen. Unten: Der Einfluss der orbital-selektiven Lokalisierung wird hier durch zwei $5f$ -Elektronen erklärt, die Teil eines Ionenkernes sind, wobei ein $5f$ -Elektron im $j = 5/2$, $j_z = \pm 1/2$ Kanal mit den Leitungselektronen hybridisieren; für Details siehe Text.

nungen bedeutet (siehe Abb. 5.10). Es ist deutlich eine Höhlenbildung / Aufbrechen von Hälsen sichtbar, wenn die Isoenergiefläche von -6 bis $+6$ meV um die Fermi-Energie verschoben wird. Für Schicht 1 kann in diesem Energiebereich keine Änderung der Topologie festgestellt werden. Demnach ist Schicht 2 die einzige, die eine Änderung der Topologie, verursacht durch Magnetfelder im Bereich von 30 T, zeigt.

Als letzter Schritt wurde der Charakter der itineranten Elektronen spezifiziert, indem den $5f$ -($j = 5/2$, $j_z = \pm 1/2$)-Kanälen erlaubt wurde mit dem Leitungsbändern zu hybridisieren. Wieder zeigen die Isoenergieflächen ETTs, wenn ihre Energie um ± 6 meV um die Fermi-Energie verschoben wird (vgl. Abb. 5.11). Damit können in den Bandstrukturechnungen (mit einem von drei $5f$ -Elektronen als delokalisiert angenommen) ETTs der Fermi-Oberfläche in einem korrelierten Elektronensystem, in diesem Fall UPt_2Si_2 , gefunden werden. Dieser theoretische Befund unterstützt die experimentellen Beobachtungen vollständig.

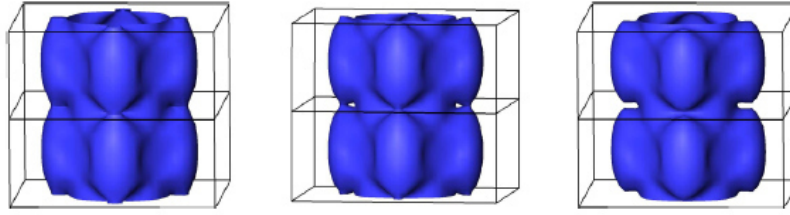


Abbildung 5.10.: Lifshitz-Übergang für den Fall, dass die $5f$ -Elektronen als lokalisiert angenommen werden. Die Isoenergieflächen $E = E_F - 6$ meV (links), $E = E_F$ (Mitte), und $E = E_F + 6$ meV (rechts) zeigen eine Kaskade von ETT's durch eine Höhlenausbildung und einer Aufbrechung des Halses. Diese Energien sind mit einer Feldvariation im Bereich von einigen zehn Tesla zu vergleichen; für Details siehe Text.

5.5. Zusammenfassung

Zusammenfassend haben wir einen experimentellen Hinweis für einen feldinduzierten erster Ordnungs-Phasenübergang mit Lifshitz-Charakter im korrelierten Elektronensystem UPt_2Si_2 herausgearbeitet. Dabei wurden die Untersuchungen der elektronischen und strukturellen Eigenschaften miteinander vereint. Darüber hinaus konnte bestimmt werden, dass für die FS kritische Punkte nahe der Fermi-Energie E_F in der Banddispersion vorliegen, wenn zwei der $5f$ -Elektronen als lokalisiert angenommen werden. Diese implizieren, dass ein feldinduzierter Lifshitz-Übergang in diesem System erwartet wird. Im Gegensatz zum dualen Modell konnte im Test des „Alle-Elektronen sind itinerant“-Modell bestätigt werden, dass die kritischen Punkte zu weit weg von der Fermi-Energie sind, als dass sie relevant für experimentelle Untersuchungen wären. Damit konnte mit unseren Studien die Konsistenz unserer Experimente mit den Vorhersagen, die auf den dualen Charakter der $5f$ -Elektronen in einem Uran-Übergangsmetall mit starken elektronischen Korrelationen basieren, gezeigt werden.

Letztendlich stellt sich noch die Frage, was die Ursache für die weiteren Phasen in UPt_2Si_2 für $B \parallel c$ -Achse ist. Mit der Zuordnung des erste

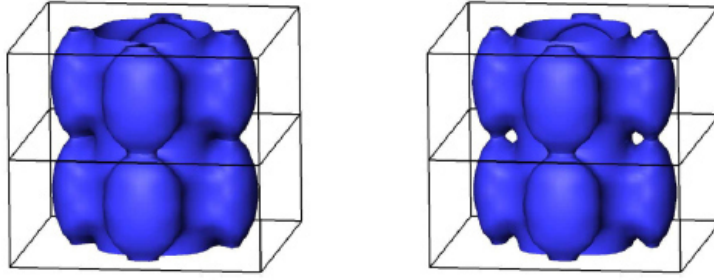


Abbildung 5.11.: ETT's im dualen Modell mit zwei lokalisierten $5f$ -Elektronen erlaubt den $5f$ -($j = 5/2$, $j_z = \pm 1/2$)-Kanal mit dem Leitungsband zu hybridisieren. Aufgetragen sind hier die Isoenergieflächen $E = E_F - 6$ meV (links) und $E = E_F + 6$ meV (rechts); für Details siehe Text.

Ordnungs-Phasenübergangs in Phase V mit einer ETT wird der zweite Ordnungs-Charakter des I-III Übergangs deutlich ungewöhnlicher. Der Charakter des Übergangs, wie er in der Magnetisierung zu sehen ist (siehe Ref. [112]), zusammen mit der Größe des Sprunges in der Magnetisierung, könnte zum Beispiel mit einem Spin-Flop Übergang erklärt werden. Dabei richten sich die antiferromagnetisch geordneten Spins in einen verkanteten Zustand senkrecht zu dem extern angelegten Magnetfeld aus. Diese Beobachtung wirft die Frage nach dem Ursprung von Phase IV auf, so wie sie in ähnlicher Weise auch bei dem Übergang I-III in der Magnetisierung zu sehen ist. Im Bezug auf die Magnetisierung ist keine signifikante Änderung zwischen Phase III und V zu sehen.

Wenn man andererseits berücksichtigt, dass thermisches Ausschmieren eine eindeutige Identifizierung der Phasen nicht ermöglicht, kann Phase IV konzeptionell die FS-Topologie von Phase I/III, Phase V oder eine andere besitzen. Wenn die FS-Topologie nicht der von Phase I/III entspricht, bedeutet dies, dass es mehrere Lifshitz-Übergänge im Phasendiagramm für $B \parallel c$ -Achse in UPt_2Si_2 geben muss. Werden die Beobachtung in einem globaleren Kontext gesetzt, bedeutet dies, dass das Zwischenspiel zwischen Spinreorientierung/Anisotropie und der FS-Topologie die Entstehung von verschiedenen komplexen feldinduzierte Phasen in UPt_2Si_2 begünstigen. Diese könnten relevant für das Verständnis von exotischen Phänomenen, wie sie im komplexen Phasendiagramm

von URu_2Si_2 auftreten, sein [121, 131, 132].

6. $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$

Zur Einführung in dieses abschließende Kapitel zu den physikalischen Eigenschaften von $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$ sollen im folgenden die Erkenntnisse vorangegangener Untersuchungen dargestellt werden. Dabei liegt der Fokus speziell auf den bereits durchgeführten thermodynamischen Messungen der Magnetisierung [133], der spezifischen Wärme [134] und der Messung des spezifischen Widerstandes [134]. Die Ergebnisse dieser Studien werden als Grundlage der Bewertung unserer Daten in diesem Kapitel dargestellt. Außerdem wird das magnetische Phasendiagramm von $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$, soweit es durch Takeuchi et al. [133] bestimmt wurde, in dieser Arbeit dargestellt, um auf Basis dieser Datensätze die Eigenschaften von $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$ weitergehend zu diskutieren.

6.1. Einführung

$\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$ wurde erstmals von Hickey et al. synthetisiert und kristallisiert in der monoklinen $\text{Lu}_2\text{Co}_3\text{Si}_5$ -Struktur in der Raumgruppe $C2/c$ [135]. Die Gitterparameter wurden zu $a = 9.8096(7) \text{ \AA}$, $b = 11.3857(8) \text{ \AA}$ und $c = 5.8415(4) \text{ \AA}$ bestimmt [136]. Die sehr komplexe Kristallstruktur weißt allerdings nur eine sehr kleine monokline Verzerrung auf ($\beta = 90.045(10)^\circ$), sodass im folgenden $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$ als quasiorthorhombisch (wie in der Literatur) angesehen werden kann (vgl. Abb. 6.1). Dabei stehen die b - und c -Achse senkrecht zueinander und die minimal verzerrte a' -Achse wird im Rahmen dieser Arbeit bei der Betrachtung der eigenen Messergebnisse als a -Achse bezeichnet und als senkrecht zur b - und c -Achse angesehen. Bei einer Temperatur von 25.5 - 25.7 K geht $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$

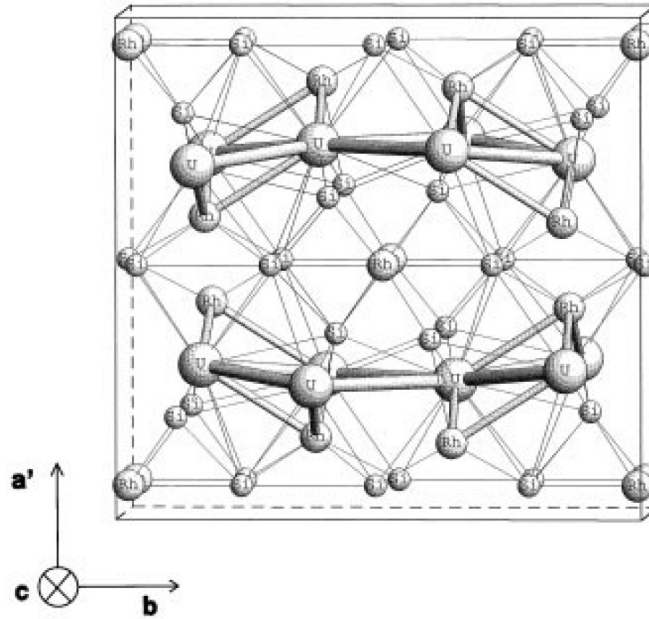


Abbildung 6.1.: Kristallstruktur von $U_2Rh_3Si_5$ in quasiorthorhombischen Koordinaten. Die großen Kugeln stellen die Uranatome, die mittleren Kugeln die Rhodiumatome und die kleinen Kugeln die Siliciumatome dar. Aus [134] entnommen.

in eine antiferromagnetisch geordnete Phase über [133, 134, 136, 137]. Die Momente liegen dabei in der a - b -Ebene (vgl. Abb. 6.2) und sind für den geordneten Fall bei 9 K zu $\mu = 2.35 \mu_B$ bestimmt worden [134].

Messungen der spezifischen Wärme von Becker et al. ergab einen Sommerfeldkoeffizienten von $\gamma = 22 \text{ mJ/K}^2\text{mol}$ [134]. Es suggeriert, dass die magnetischen Momente in $U_2Rh_3Si_5$ nicht stark abgeschirmt sind und bei den Uranatomen lokalisiert sind [134]. Weiterhin deuten die thermodynamischen Messungen darauf hin, dass es sich bei dem Übergang in die antiferromagnetisch geordnete Phase um einen Phasenübergang erster Ordnung handelt, was durch zusätzliche Neutronenstreuuntersuchungen unterstützt wird [136]. Aus dem Curie-Weiß-Verhalten in der Suszeptibilität haben Becker et al. das effektive paramagnetische Moment der Uranatome zu $3.3\mu_B$ bestimmt [134]. Darüber hinaus konnten in der Messung des spezifischen Widerstandes und der Suszeptibilität Charakteristiken für eine Kristallfeldaufspaltung in $U_2Rh_3Si_5$ heraus

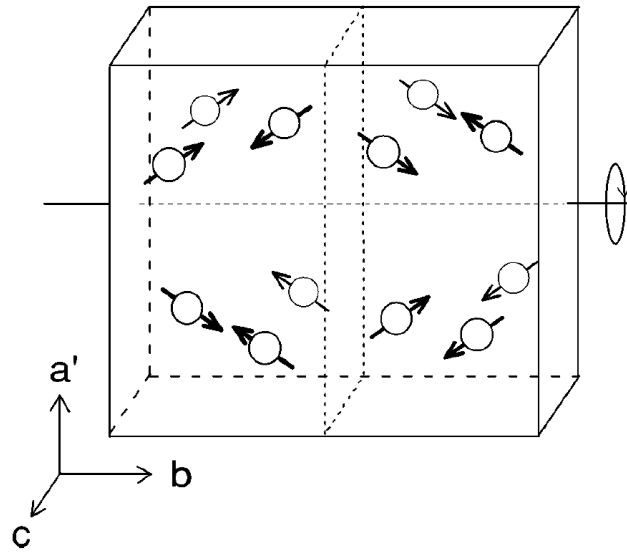


Abbildung 6.2.: Magnetische Struktur von $U_2Rh_3Si_5$ in quasiorthorhombischen Koordinaten. Die magnetischen Momente liegen auf den U-Atomen in der a - b -Ebene. Die gestrichelten Linien verdeutlichen die Symmetrieelemente der magnetischen Struktur. Aus [136] entnommen.

gearbeitet werden [134]. Betrachtet man die gemessene Magnetisierung von Takeuchi et al., so sieht man eine starke Anisotropie zwischen den verschiedenen kristallographischen Achsen (siehe Abb. 6.3) [133]. Die in jener Arbeit präsentierten Messungen wurden in gepulsten Felder bis 30 T durchgeführt. In der Magnetisierung entlang der a - und c -Achse sind keine Anomalien zu erkennen, die auf einen magnetischen Phasenübergang hindeuten. Die Magnetisierung steigt moderat linear bis $0.1 - 0.2 \mu_B$. Bei der Messung entlang der b -Achse ist ein Sprung der Magnetisierung bei ca. 14 T zu verzeichnen. Dabei ändert sich die Magnetisierung um $1.6 \mu_B$ in einem sehr kleinen Intervall, was die Idee eines Phasenübergang erster Ordnung zusätzlich unterstützt. Außerdem verdeutlicht das Inset in Abb. 6.3 einen hysteretischen Effekt beim Durchlaufen des Phasenüberganges, da dM/dB des field-up-sweep und field-down-sweep leicht zueinander verschoben sind. Nach dem Sprung ist die Magnetisierung noch nicht in der Sättigung, da sie auch hier moderat linear weiter ansteigt. Zusammen mit dem gemessenen geord-

neten Moment in Ref. [134] von $2.35 \mu_B$ und der Tatsache, dass sich die Magnetisierung für $B \parallel a$ und c (bis 30 T) noch nicht in der Sättigung befindet, ist zu vermuten, dass $U_2Rh_3Si_5$ entlang der a - und c -Achse bei Magnetfeldern > 30 T noch einen magnetischen Phasenübergang aus der AFM-Phase durchläuft.

Vor diesem Hintergrund wurden von uns weiterführende Messungen der Magnetisierung und der axialen Magnetostriktion in gepulsten Magnetfeldern bis 65 T entlang der drei Kristallachsen von $U_2Rh_3Si_5$ durchgeführt. Da bei diesen Arten der Untersuchungen sowohl die magnetischen Eigenschaften als auch die strukturellen Veränderung unter Einwirkung eines extern angelegten Magnetfeldes betrachtet werden, ist es möglich den ersten Ordnungsphasenübergang genauer zu beleuchten. Außerdem lassen sich aus dem resultierenden Phasendiagramm Rückschlüsse über die elektronischen Zustände in $U_2Rh_3Si_5$ schließen. Im Rahmen der experimentellen Untersuchungen von $U_2Rh_3Si_5$ wird darüber hinaus diskutiert, ob die Kristallfeldaufspaltung zusammen mit besagtem magnetostrukturellen Phasenübergang erster Ordnung und lokalen Spinfluktuationen zu einer selbstverstärkenden Energieminimierung mit einhergehender Änderung der Kristallfeldzustände führt, was eine antiferromagnetische Ordnung begünstigen könnte [138]. Dieser Effekt wird in der vorangegangenen Literatur als „Bootstrapping“-Effekt bezeichnet [133, 134, 136, 137]. Die Vermutung, dass sich weitere Phasenübergänge im Phasendiagramm von $U_2Rh_3Si_5$ zu höheren Feldern befinden, wird durch das magnetische Phasendiagramm von Takeuchi et al. in Ref. [133] suggeriert (vgl. Abb. 6.4). In diesem Phasendiagramm ist lediglich die antiferromagnetische Phase für die Messung entlang der b -Achse abgeschlossen. Eine leichte Krümmung der Phasengrenzenlinie der Messungen entlang der a -Achse suggeriert, dass die Phasengrenze entlang dieser Richtung mit gepulsten Magnetfeldern bis 65 T noch erreicht werden kann. Eine einfache Extrapolation der gekrümmten Phasengrenzenlinie führt zu einer Schätzung für das kritische Feld zwischen 35 bis 45 T. Die Phasengrenzenlinie entlang der c -Achse zeigt keine signifikante Krümmung und unterstreicht die starke Anisotropie in diesem System. Aus diesen Daten lässt sich somit auch keine Abschätzung für das kritische Feld entlang der c -Achse durchführen und es ist zu vermuten, dass der Anisotropiefaktor bzgl. der kritischen Felder zwischen b - und c -Achse deutlich größer als 3 ist, da

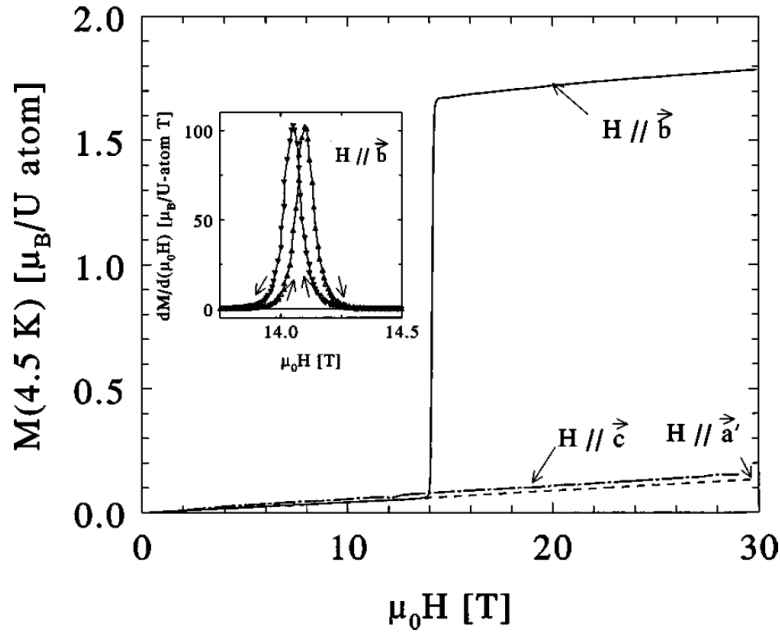


Abbildung 6.3.: Magnetisierung von $U_2Rh_3Si_5$ in gepulsten Magnetfeldern entlang der drei Kristallachsen bis 30 T. Das Inset zeigt exemplarisch die Ableitung der Magnetisierung entlang der b -Achse während des field-up-sweep und des field-down-sweep. Aus Ref. [133] entnommen.

bereits der Anisotropiefaktor zwischen b - und a -Achse in diesem Bereich liegt.

Zusätzlich wurden von uns weiterführende Messungen des spezifischen Widerstandes und des Magnetowiderstandes durchgeführt. Diese dienen einerseits der Charakterisierung der Proben und der Probenqualität nach den Hochfeldmessungen und können im Kontext mit den bisherigen Ergebnissen für den spezifischen Widerstand in Abb. 6.5 diskutiert werden.

Die experimentellen Ergebnisse der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen sind Grundlage für eine zukünftige theoretische Modellierung der elektronischen Eigenschaften von $U_2Rh_3Si_5$. Da $U_2Rh_3Si_5$ im Bereich der korrelierten Elektronenphysik als ein Kandidat für einen „bootstrapping effect“ [138] angesehen wird, kann die theoretische Betrachtung

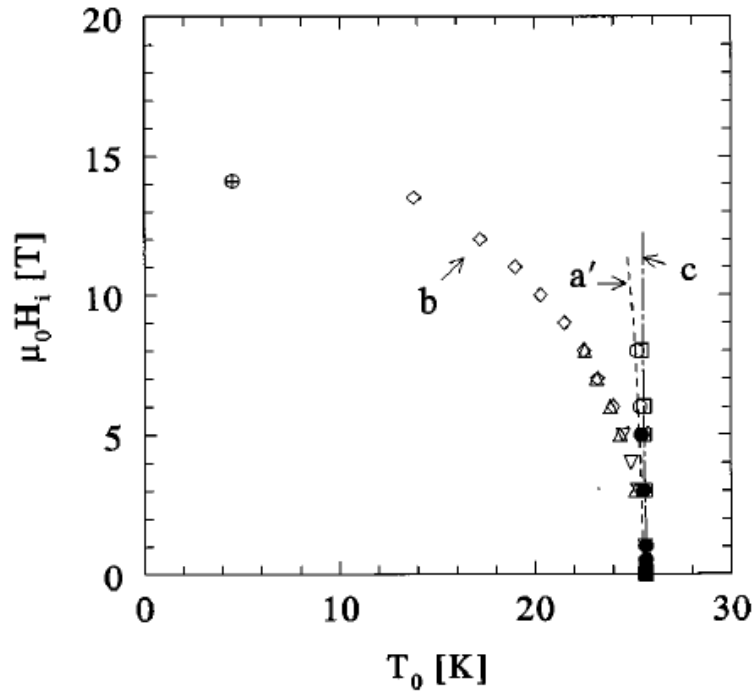


Abbildung 6.4.: Das magnetische Phasendiagramm für $U_2Rh_3Si_5$ auf Basis von Messungen in Feldern bis 30 T. Die Phasengrenzlinien wurden in Ref. [133] aus der Magnetisierung (M_b : \oplus , \diamond), dc-SQUID Suszeptibilität (χ_a : \bullet , χ_b : ∇ , χ_c : $+$), und dem spezifischen ac-Widerstand für $H \parallel I$ (ρ_a : \circ , ρ_b : Δ , ρ_c : \square) bestimmt. Aus Ref. [133] entnommen.

tung dieses Systems Hinweise auf ein besseres Verständnis dieses Effektes liefern. Da die Kombination aus dem Kristallfeldschema und dem strukturellen und magnetischen Phasenübergang vermutlich die Bildung einer antiferromagnetischen Phase begünstigt, liefern die experimentellen Betrachtungen der einzelnen Mechanismen während des Phasenübergangs Informationen über die entscheidenden Energiezustände des Systems. Dadurch kann in Zukunft die ungewöhnliche Natur des ersten Ordnungsphasenüberganges von $U_2Rh_3Si_5$ sowohl von experimenteller als auch von theoretischer Seite verstanden werden.

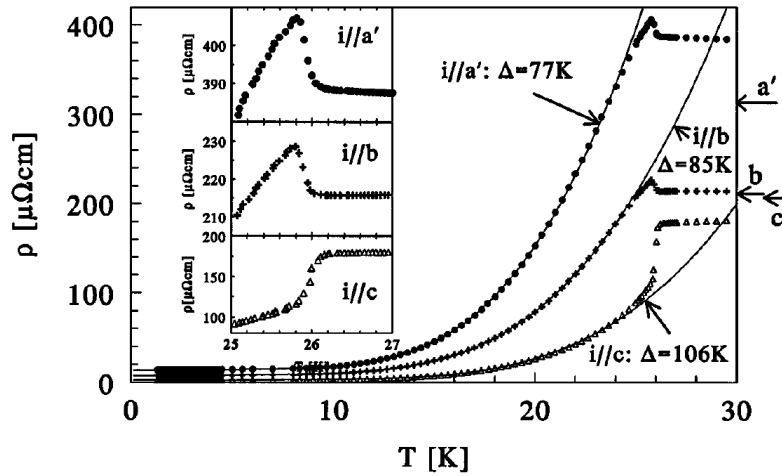


Abbildung 6.5.: Spezifischer Widerstand für die drei Kristallachsen. Das Inset zeigt die Details der magnetischen Anomalie bei T_N . Aus Ref. [134].

6.2. Experimentelle Umsetzung

Für die Hochmagnetfelduntersuchungen wurden drei Kristalle verwendet, die aus einem neu an der Charles University, Prague, gezogenen Einkristall präpariert wurden (Arbeitsgruppe Sechovsky). Dabei wurden stäbchenförmige Proben mit Bulk-Abmessungen mit einer Querschnittsfläche von $\sim 1 \times 1 \text{ mm}^2$ und einer Länge von einigen Millimetern ausgewählt. Die lange Achse ist jeweils so gewählt worden, dass sie parallel zu den drei Kristallachsen des quasiorthorhombischen Gitters von $U_2Rh_3Si_5$ verlaufen (vgl. Abb. 6.1).

Die Messungen der axialen Magnetostriktion und der Magnetisierung von $U_2Rh_3Si_5$ wurden im Los Alamos High Field Laboratory (LANL) durch F. Weickert, M. Jaime und N. Harrison in gepulsten Feldern bis 65 T entlang der a -, b - und c -Achse durchgeführt. Um die wesentlichen Eckpunkte des Phasendiagramms zu erfassen, wurden die Messungen bei tiefen Temperaturen von 1.4 K bis knapp oberhalb von T_N (30 K) durchgeführt. Für die Magnetostruktionsmessungen wurde, wie bereits bei UPt_2Si_2 , ein optisches Fiberglas mit Bragg-Markern, wie in Ref.

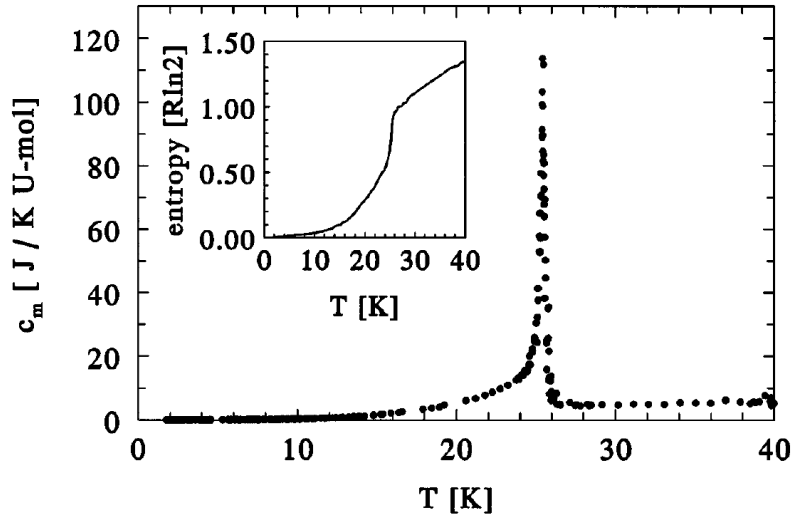


Abbildung 6.6.: Spezifische Wärmekapazität von $U_2Rh_3Si_5$ in Abhängigkeit der Temperatur. Das Inset zeigt die Entropie von $U_2Rh_3Si_5$. Aus Ref. [134].

[119, 120] beschrieben, verwendet. Die Magnetisierung wurde in einem Spulensystem mittels Lock-In-Technik aufgenommen. Da die Messungen der Magnetisierung allerdings nur einen relativen Verlauf ergeben, musste für die Bestimmung der Absolutwerte nachträglich die Magnetisierung bis 5 T in einem SQUID-Magnetometer bestimmt werden. Dadurch ist es möglich die Hochfeldmessungen auf Absolutwerte in der Magnetisierung zu skalieren.

Der spezifische Nullfeldwiderstand und der longitudinale Magnetowiderstand ($B \parallel I$) aller drei Proben und somit entlang der drei Kristallachsen wurden in einem ^4He -Kryostaten mit VTI „variable temperature insert“ gemessen (vgl. Anhang A). Die Strom- und Spannungskontakte für die AC-Widerstandsmessung in Vier-Punkt-Konfiguration wurden mittels Silberleitlack an den Proben befestigt. Zuvor wurden die Proben mittels GE-Varnish auf einen Probenträger geklebt, sodass eine Messung für $B \parallel I$ durchgeführt werden kann. Für den spezifischen Nullfeldwiderstand wurde die Temperatur von 2 K bis 100 K gefahren, der Magnetowiderstand wurde bis 30 K bei jeweils fester Temperatur zu Feldern von 9 T gemessen. Um Besonderheiten und Anomalien innerhalb des Magnetowi-

derstandes genauer zu beleuchten, wurde die festgehaltene Temperatur für die jeweiligen Messungen um T_N in sehr kleinen Schritten von 0.1 K variiert.

Wie sich zeigen wird, führt das Durchlaufen eines strukturell-magnetischen Phasenüberganges zu einer Änderung der Probenqualität. Aus diesem Grund schien es bei den Proben nach den Hochfeldmessungen nicht sinnvoll die Geometrie für die Absolutwerte des spezifischen Widerstandes durch eine Rastermethode zu bestimmen. Dies führt dazu, dass die Absolutwerte für den spezifischen Widerstand entlang aller drei Kristallachsen mit äußerster Vorsicht zu betrachten sind. Für die grobe Vergleichbarkeit der Proben untereinander und mit der Literatur wurde eine geometrische Abschätzung für die Bestimmung des spezifischen Widerstand durchgeführt. Um die sich verändernde Probenqualität zu beleuchten, werden in der folgenden Diskussion zwei Widerstandsmessungen an der selben Probe miteinander verglichen. Dabei wurde die erste Messung der Nullfeldwiderstandsmessung für $I \parallel b$ wiederholt, nachdem die Probe ausgebaut und in gleicher Konfiguration neu kontaktiert wurde. Da die Reihenfolge der Experimente eine entscheidene Rolle bei der Interpretation der Probenqualität spielt, sei an dieser Stelle noch einmal betont, dass erst die Hochfeldmessung (Magnetisierung / Magnetostriktion) und anschließend die Messungen in unserem Labor erfolgt sind (spezifischer Widerstand / Vergleich zweier Widerstandsmessungen an der selben Probe / Magnetowiderstand).

6.3. Ergebnisse und Diskussion

Im folgenden werden nun alle Ergebnisse zu $U_2Rh_3Si_5$, die im Rahmen dieser Arbeit entstanden sind, dargestellt und zur Erstellung des magnetischen Phasendiagrammes genutzt. Für eine (nachträgliche) Charakterisierung der Proben nach den Hochfeldmessungen sowie zur Interpretation des Magnetowiderstandes wurde der spezifische Nullfeldwiderstand entlang der drei Kristallachsen gemessen und ist jeweils in Abb. 6.7, 6.8 und 6.9 dargestellt. Auf den ersten Blick fällt der sehr hohe residuelle

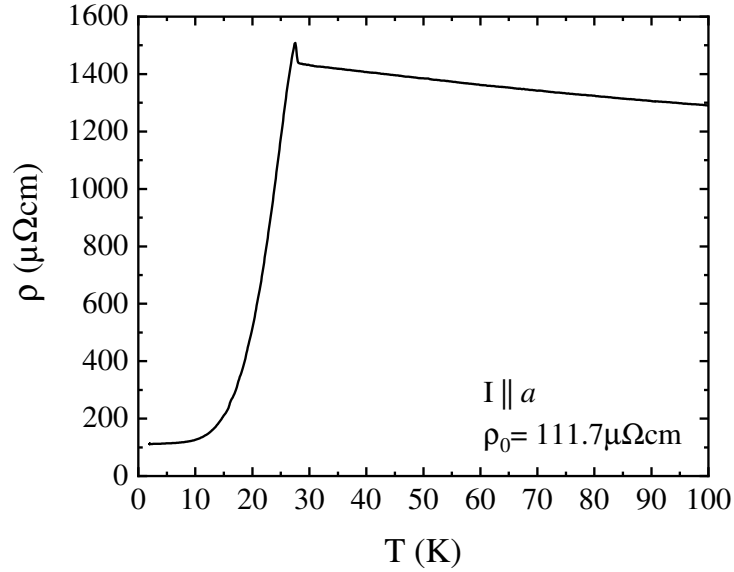


Abbildung 6.7.: Spezifischer Widerstand von $U_2Rh_3Si_5$ für $I \parallel a$ -Achse bis 100 K.

Restwiderstand ρ_0 bei jeweils 2 K auf. Es liegt zusätzlich eine starke Anisotropie dieser Werte zwischen den drei Achsenrichtungen vor, die allerdings, wenn auch weniger ausgeprägt, in Ref. [134] beobachtet wurde. Die Werte für ρ_0 variieren zwischen $110 \mu\Omega\text{cm}$ für $I \parallel a$ -Achse, $24.6 \text{ m}\Omega\text{cm}$ für $I \parallel b$ -Achse, und $147.4 \text{ m}\Omega\text{cm}$ für $I \parallel c$ -Achse. Somit sind alle Werte für ρ_0 unserer Proben größer als der residuelle Restwiderstand in Ref. [134] (10 bis $20 \mu\Omega\text{cm}$). Lediglich ρ_0 für $I \parallel a$ -Achse fällt der Wert grob in die selbe Größenordnung.

Wird der residuelle Restwiderstand mit den Widerstandswerten bei 100 K verglichen, kann ein sogenanntes residuelles Restwiderstandsverhältnis $RRR_{100K/2K}$ gebildet werden. Dabei ergeben sich Werte von $I \parallel a$: 11.8, $I \parallel b$: 1.2, und $I \parallel c$: 1.1. Wie eingangs erwähnt nimmt die Probenqualität aller drei Proben mit jeder neuen Messung ab, bzw. genauer ausgedrückt: Der Restwiderstand wird mit jeder Messung größer, aber die Übergangstemperatur T_N verändert sich nicht. Dieses Verhalten spricht für die Entstehung von Mikrorissen innerhalb des Einkristalls - aus einem Einkristall werden viele Einkristalle - und der effektive Widerstandspfad

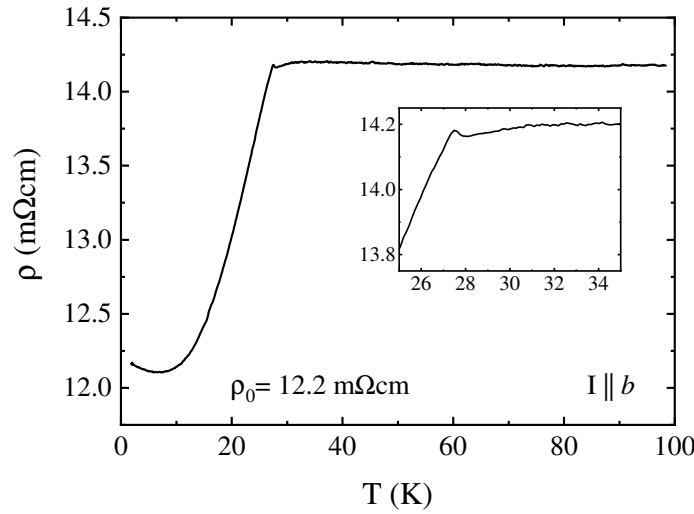


Abbildung 6.8.: Spezifischer Widerstand von $U_2Rh_3Si_5$ für $I \parallel b$ -Achse bis 100 K.

verläuft teilweise perkolativ über die Korngrenzen. Um dies zu illustrieren, wurde in Abb. 6.10 der gemessene Widerstand für $I \parallel b$ -Achse von zwei Messdurchläufen aufgetragen. Die beiden Messungen wurden in der selben Konfiguration und im gleichen Temperaturbereich durchgeführt, wobei die zweite Messung nach dem Ausbau und einer Neukontaktierung der Probe stattgefunden hat. Da die Kontaktierung in der selben Konfiguration wie bei der ersten Messung, durchgeführt wurde, kann der Unterschied in den Absolutwerten des gemessenen Widerstandes nicht durch den Geometriefaktor erklärt werden. Der Restwiderstand R_0 der zweiten Messung ist mit 2.457 Ω doppelt so groß wie vor der Neukontaktierung. Die relative Änderung des Widerstandes ist ebenfalls um einen Faktor 2 größer. Das spricht für eine Vergrößerung des Widerstandspfades um den selben Faktor, was die Idee von entstehenden Mikrorissen unterstützt. Die leichte Überhöhung des Widerstandes bei T_N , die in der ersten Messung noch zu erkennen war, ist in der zweiten Messung nicht mehr zu sehen. Beide Charakteristiken sprechen dafür, dass das magnetische Signal der Probe im größer werdenden Widerstandssignal, welches durch die entstandenen Korngrenzen hervorgerufen wird, untergeht. Die Zunahme der Mikrorisse und ihre Auswirkungen auf die Probenqualität durch die Messungen muss in der Diskussion

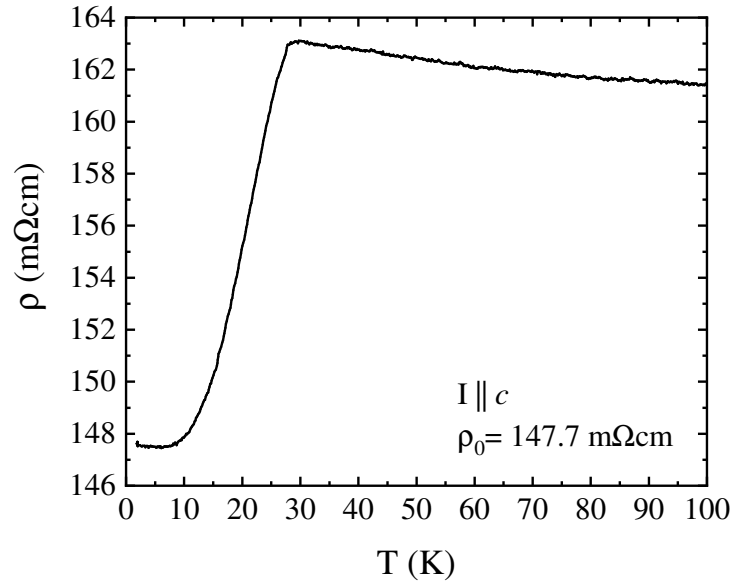


Abbildung 6.9.: Spezifischer Widerstand von $U_2Rh_3Si_5$ für $I \parallel c$ -Achse bis 100 K.

und für zukünftige Untersuchungen also stets berücksichtigt werden. Unter Umständen sollte in Erwägung gezogen werden, die Proben für weitere Untersuchungen zu Tempern und so die entstandenen Mikrorisse, Verspannungen und Verzerrungen zu minimieren. Allerdings zeigt der Vergleich auch, dass sich dennoch Aussagen über magnetische Signaturen (falls sie noch zu erkennen sind) und den relativen Verlauf tätigen lassen.

Abgesehen von der Abhängigkeit des Restwiderstandes von der Historie des (mehrfachen) Durchlaufes des Phasenüberganges lassen sich aus dem Widerstand eine Reihe von Beobachtungen ableiten. Mit steigender Temperatur erhöht sich der Widerstand entlang der drei Kristallachsen, wobei bei einer Temperatur von ~ 26 K (T_N) ein scharfes Abknicken des Widerstandes für $I \parallel b$ und $I \parallel c$ zu verzeichnen ist, während ein signifikantes Überspringen des Widerstandes für $I \parallel a$ innerhalb der magnetischen Anomalie auftritt. Dieses Überspringen ist auch bei der ersten Messung für $I \parallel b$ zu erkennen und ist in Abb. 6.8 im Inset verdeutlicht. Anschließend gehen alle drei Verläufe in einen leicht

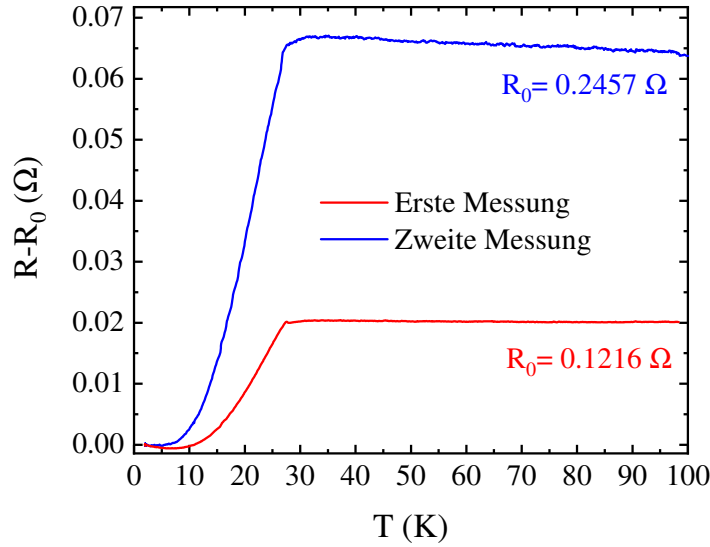


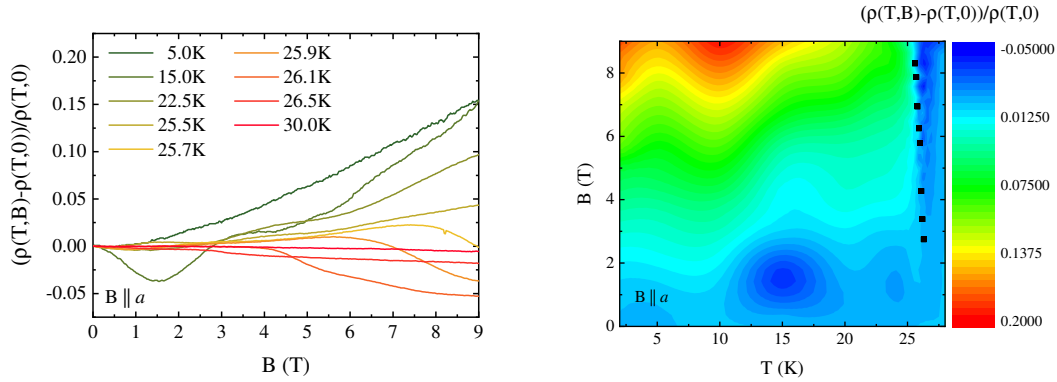
Abbildung 6.10.: Vergleich zwischen zwei Messzyklen bei der Messung des Widerstandes für $I \parallel b$. Die Messungen zeigen einen hysteretischen Effekt, der auf die Entstehung von Mikrorissen beim Durchlaufen von T_N zurückzuführen ist; für Details siehe Text.

sinkenden Widerstandsverlauf über, welches in Ref. [134] der Kristallfeldaufspaltung und dem paramagnetischen U-Atomen zugeschrieben wird. Vergleicht man, abgesehen von den hohen residuellen Restwiderständen und den stark variierenden RRR, die relativen Verläufe des spezifischen Widerstandes und die Signaturen bei T_N mit den Messungen aus Ref. [134] (vgl. Abb. 6.5), zeigen unsere Ergebnisse ein qualitativ ähnliches Verhalten. Lediglich für $I \parallel b$ konnten wir nur für die erste Messung einen Überschwinger bei T_N beobachten und der Knick in den scharfen Anstieg für $I \parallel c$ vor T_N ist bei unseren Messungen ebenfalls nicht zu sehen. Die Unterschiede in ρ_0 und die schlechten RRR sind sehr wahrscheinlich auf die Zunahme an Mikrorissen zurückzuführen, wie der Vergleich in Abb. 6.10 zeigt.

Um die Kopplung zwischen dem elektrischen Transport und dem Verhalten von $U_2Rh_3Si_5$ in extern angelegten Magnetfeldern genauer zu betrachten, wurde entlang der drei Kristallachsen der longitudinale Ma-

gnetowiderstand bestimmt. Die Temperaturen wurden dabei so gewählt, dass der bisher bekannte phasendiagrammrelevante Bereich bezüglich der Temperatur vollständig abgedeckt und ein Fokus qua Datendichte in der Nähe von T_N gesetzt wurde.

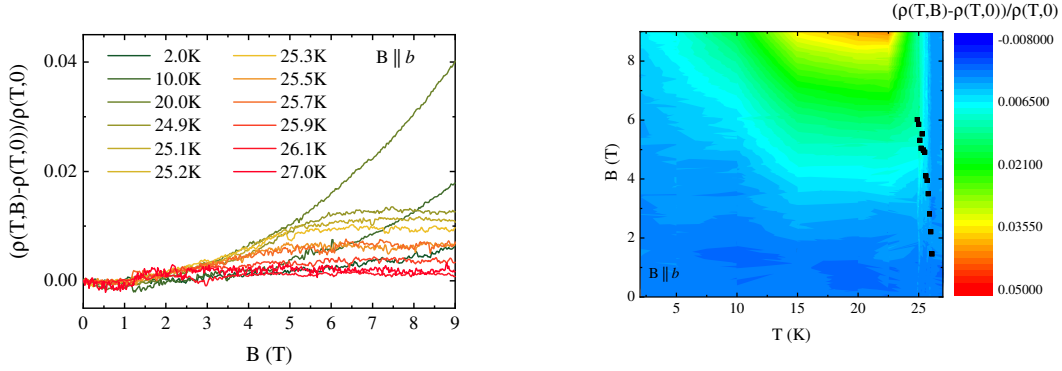
Zunächst sollen die Ergebnisse für $I \parallel a$ präsentiert werden: Dafür wurde der normierte Magnetowiderstand $(\rho(B, T) - \rho(B = 0, T)) / \rho(B = 0, T)$ einerseits gegen das Magnetfeld (siehe Abb. 6.11a) und andererseits als Konturplot gegen das angelegte Magnetfeld und die Temperatur in Abb. 6.11b aufgetragen, um ggf. auftretende Anomalien durch eine zusätzliche Perspektive besser identifizieren zu können. Der relative Verlauf des MR zeigt ein minimales Rauschlevel. Das bedeutet, dass, wie auch schon bei der Messung des spezifischen Widerstandes für $I \parallel a$, magnetische Signaturen zu erkennen sind und nicht signifikant durch einen erhöhten Nullfeldwiderstand (der bei mikrorissbedingtem erhöhtem Restwiderstand durch die Normierung deutlich mehr ins Gewicht fallen würde) unterdrückt werden. Für tiefe Temperaturen liegt ein positiver MR vor (grüne Kurven in Abb. 6.11a und rote Insel in Abb. 6.11b) der mit zunehmender Temperatur vor allem für den Hochfeldbereich > 4 T immer schwächer ausgeprägt ist. Ab einer Temperatur von 15 K kommt es zu einer Ausbildung einer zusätzlichen Signatur in den Messungen. Dies äußert sich durch ein auftretendes Minimum bei 15 K und 1.5 T. Steigt die Temperatur weiter, so verschwindet dieses Minimum wieder und wird durch eine zusätzliche Signatur in Form eines Abfallens des MR bei hohen Feldern abgelöst. Der Punkt, an dem das Abfallen einsetzt, wandert mit zunehmender Temperatur hin zu kleineren Feldern. Der Punkt der größten Krümmung wurde grafisch als Phasengrenze für das Phasendiagramm bestimmt und als zusätzliche Information im Konturplot ergänzt (schwarze Punkte). Demnach leiten diese schwarzen Punkte ein keilförmiges Minimum im Konturplot ein, wobei dieser Keil auf einen Bereich zwischen 25 und 27 K zeigt. Oberhalb von T_N scheint das extern angelegte Magnetfeld so gut wie keinen Einfluss mehr auf den Magnetowiderstand entlang der a -Achse zu haben (rote Kurven in Abb. 6.11a und hellblauer Bereich neben dem keilförmigen Minimum im Konturplot). Somit hat $U_2Rh_3Si_5$ für $I \parallel B \parallel a$ in diesem Feld und Temperaturbereich einen Magnetowiderstand von 20 % bis -5 %.



(a) Longitudinaler Magnetowiderstand von $U_2Rh_3Si_5$ für unterschiedliche Temperaturen (von grün nach rot) bis 9 T. (b) Longitudinaler Magnetowiderstand von $U_2Rh_3Si_5$ als Funktion des angelegten Magnetfeldes B und der Temperatur T .

Abbildung 6.11.: Normierter longitudinaler Magnetowiderstand von $U_2Rh_3Si_5$ für $B \parallel I \parallel a$ von 2 K bis 30 K in Feldern bis 9 T (a) als Funktion des Magnetfeldes und (b) als Konturplot.

Auch der normierte longitudinale Magnetowiderstand für $I \parallel B \parallel b$ wurde für eine genaue Betrachtung in den oben erwähnten Formen dargestellt. Für Temperaturen zwischen 2 und 27 K bis zu einem maximal angelegten Magnetfeld von 9 T wurde $(\rho(B, T) - \rho(B = 0, T)) / \rho(B = 0, T)$ in Abb. 6.12a magnetfeldabhängig und in Abb. 6.12b als Konturplot aufgetragen. Bei der Betrachtung der Ergebnisse in Abb. 6.12a fällt das deutlich höhere Rauschlevel und die allgemein kleineren Absolutwerte für den Magnetowiderstand, im Vergleich zur a -Richtung, auf. Dieses kann in erster Linie auf den allgemein erhöhten Nullfeldwiderstand zurückgeführt werden. Dieser erhöht den Anteil im Messsignal, der in der normierten Betrachtung des MR den originär magnetischen Signalanteil herabsenkt. Allerdings sei hier für die spätere Interpretation noch einmal an die starke intrinsische Anisotropie von $U_2Rh_3Si_5$ erinnert, die ebenfalls einen Effekt auf die magnetische Komponente des spezifischen Widerstandes haben kann. Anders als für die a -Achse wird der Magnetowiderstand für hohe Felder > 4 T nicht mit zunehmender Temperatur kleiner, sondern



(a) Longitudinaler Magnetowiderstand von $U_2Rh_3Si_5$ für unterschiedliche Temperaturen (von grün nach rot) bis 9 T. (b) Longitudinaler Magnetowiderstand von $U_2Rh_3Si_5$ als Funktion des Magnetfeldes B und der Temperatur T .

Abbildung 6.12.: Normierter longitudinaler Magnetowiderstand von $U_2Rh_3Si_5$ für $B \parallel I \parallel b$ von 2 K bis 27 K bis 9 T (a) über das angelegte Magnetfeld und (b) als Konturplot.

erfährt erst einen Anstieg startend von 1 % und erreicht bei Temperaturen von ca. 20 K (senfgrün) einen maximalen Wert von ca. 4 % (rote Insel im Konturplot). Im Anbetracht des höheren Rauschlevels ist ein Vorzeichenwechsel des Magnetowiderstandes mit steigender Temperatur nicht identifizierbar. Auch ein mögliches Minimum bei niedrigen Feldern wird gegebenenfalls durch das Rauschen überdeckt. Allerdings ist auch für die b -Achse ab einer Temperatur von 25 K eine Struktur zu erkennen, die mit zunehmender Temperatur durch das Messsignal wandert. Es kommt zu einem Abknicken des Signals und der Punkt größter Krümmung in Abb. 6.12a wurde auch hier durch schwarze Punkte im Konturplot verdeutlicht. Wie bereits bei der Messung des MR entlang der a -Achse befinden sich diese Punkte am Rand eines Minimums, das sich über T_N im Konturplot befindet. Aus diesem Grund wurden diese Punkte, genau wie die schwarzen Punkte aus den Messungen für die a -Achse als Phasengrenze, für das spätere Phasendiagramm identifiziert.

Abschließend wurde der gemessene longitudinale Magnetowiderstand entlang der c -Achse ($I \parallel B \parallel c$) gegen das Feld bis 9 T aufgetragen und

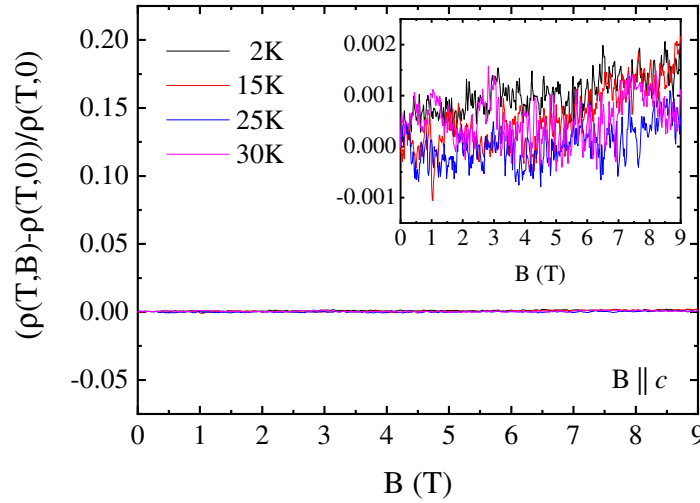


Abbildung 6.13.: Normierter longitudinaler Magnetowiderstand von $U_2Rh_3Si_5$ für $B \parallel I \parallel c$ bei 2 K, 15 K, 25K und 30 K bis 9 T; für Details siehe Text.

in Abb. 6.13 dargestellt. Exemplarisch wurden Temperaturen oberhalb und unterhalb von T_N zwischen 2 und 30 K gewählt. Das magnetfeldabhängige Signal wird bei diesen Messungen vollständig durch das experimentelle Rauschen überdeckt, weshalb hier von einem Konturplot abgesehen wurde. Auch die Absolutwerte des gesamten Messsignals bewegen sich im Bereich von unter 0.25 %. Einerseits könnte angenommen werden, dass der erhöhte Nullfeldwiderstand, wie auch schon bei $B \parallel b$ zu einer Minimierung des magnetischen Signals führt, die sich in der Normierung niederschlägt. Allerdings sind die beiden Restwiderstände ρ_0 für $I \parallel b$ und $I \parallel c$ grob in der gleichen Größenordnung und die Proben haben ca. die gleichen geometrischen Abmaße. Aus diesem Grund ist es wahrscheinlicher, dass es (fast) kein magnetisches Signal für $I \parallel B \parallel c$ gibt, weil der Magnetowiderstand entlang der c -Achse (fast) nicht von äußeren Magnetfeldern beeinflusst wird.

Im Weiteren werden die Ergebnisse der Hochfeld-Magnetisierungsmessungen vorgestellt. Um eine übersichtliche Darstellung dieser Messungen zu erhalten, wurden in Abb. 6.14, 6.15 und 6.16 exemplarisch Messungen von M entlang der kristallographischen a -, b - und c -Achse für verschie-

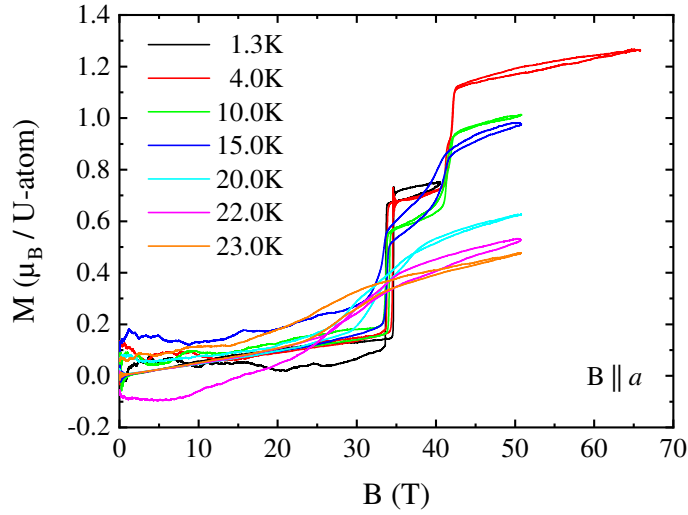


Abbildung 6.14.: Magnetisierung von $U_2Rh_3Si_5$ entlang der kristallografischen a -Achse für unterschiedliche Temperaturen in gepulsten Magnetfeldern bis 65 T; für Details siehe Text.

dene Temperaturen dargestellt. Die benötigten maximalen Felder, um alle erreichbaren Phasenübergänge zu erreichen, wurden pro Achse zuvor durch jeweilige Tests (vgl. zusätzlich Magnetostruktionsdaten) ermittelt. Somit variieren die gemessenen maximalen Felder zwischen 20 und 65 T. Zur Skalierung der Messungen wurde jeweils entlang der Kristallachsen die Magnetisierung bis 5 T in einem SQUID-Magnetometer bestimmt. Dadurch können die Absolutwerte der Magnetisierung unter Berücksichtigung der Probenmasse in der Einheit $\mu_B / \text{U-Atom}$ dargestellt werden. Es ergibt sich für $B \parallel a$ und $B \parallel b$ eine maximale Magnetisierung von $\sim 1.3 \mu_B$ pro U-Atom, die allerdings erst durch Sprünge in der Magnetisierung erreicht wird (vgl. Abb. 6.14 und 6.15). Dieser Wert ist etwas geringer als in Ref. [133], wo für die Magnetisierung für $B \parallel b$ nach dem Sprung $\sim 1.6 \mu_B$ pro U-Atom gemessen wurde.

Dagegen fällt die maximale Magnetisierung entlang der c -Achse, im Vergleich mit den beiden anderen Achsen, deutlich geringer aus, da entlang der c -Achse keine Anomalien auftreten, die auf einen Phasenübergang schließen lassen (vgl. Abb. 6.16).

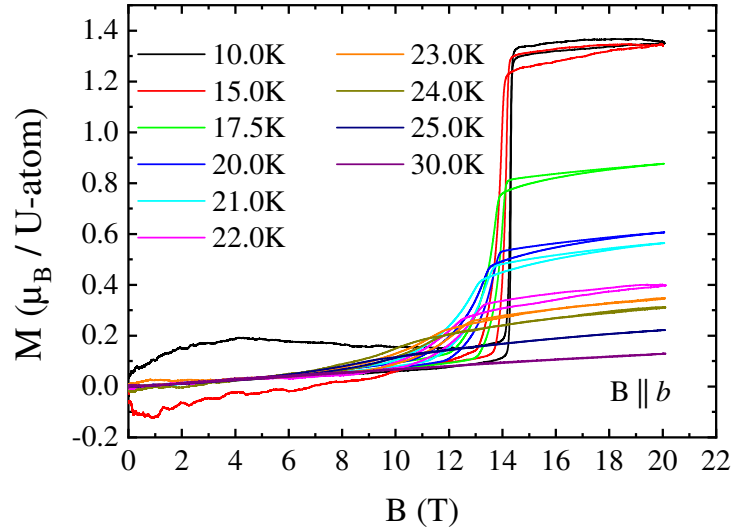


Abbildung 6.15.: Magnetisierung von $U_2Rh_3Si_5$ entlang der kristallografischen b -Achse für unterschiedliche Temperaturen in gepulsten Magnetfeldern bis 20 T; für Details siehe Text.

In der Magnetisierung für $B \parallel a$ äußert sich die oben erwähnte Anomalie durch eine multiple Struktur, die zu höheren Temperaturen ausschmiedet (vgl. Messung bei 23 K). Für tiefe Temperaturen verhält sich die Magnetisierung bis 30 T nahezu linear, durchläuft in einem relativ kurzen Feld-Intervall von 1 bis 2 T bei ~ 35 T eine sprunghafte Erhöhung bis zu einem Wert von $0.6\text{--}0.7 \mu_B$ pro U-Atom. Anschließend erfährt die Magnetisierung für $B \parallel a$ bei ~ 42 T erneut solch einen Sprung um 0.6 bis $0.7 \mu_B$ pro U-Atom, der anschließend in einen linearen Anstieg bei hohen Feldern übergeht. Für die 4 K Messung ist exemplarisch in Abb. 6.17 das hysteretische Verhalten zwischen field-up-sweep und field-down-sweep (durch die gleiche Auftragung wie in Ref. [133]) visualisiert. Der Wert für die maximale Magnetisierung nach den Phasenübergängen wird mit zunehmender Temperatur kleiner.

Zur quantitativen Analyse der Daten wurden die Punkte größter Steigung in den erwähnten Sprüngen durch $\partial M / \partial B$ bestimmt und als Phasengrenzen definiert (vgl. Abb. 6.17). Da es bei den Messungen speziell im Zusammenhang mit den Auftreten der feldinduzierten Übergänge zu

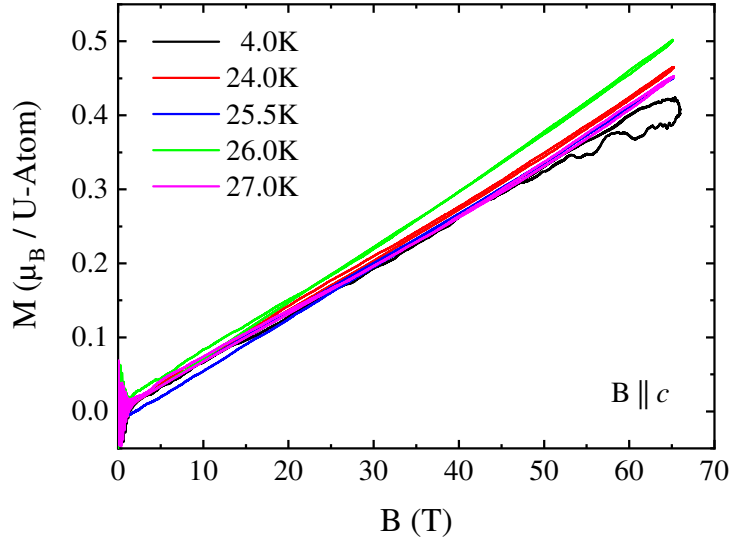


Abbildung 6.16.: Magnetisierung von $U_2Rh_3Si_5$ entlang der kristallografischen c -Achse für unterschiedliche Temperaturen in gepulsten Magnetfeldern bis 65 T; für Details siehe Text.

einer magnetischen Hysterese kommt, wurden für jede Temperatur bis zu 2 Punkte im Feldbereich < 35 T bestimmt. Im Bereich des zweiten Sprunges ist zudem eine subtile Unterstruktur in Form eines Vorzeichenwechsels der Krümmung zu verzeichnen, was auf zwei Übergänge schließen lässt, die 4 hysteretische Übergangsfelder besitzen (vgl. Abb. 6.17 Doppelpeak in $\partial M / \partial B$ bei ~ 41.5 T). Für die Übersichtlichkeit der Phasengrenzen im Feldbereich > 40 T wurden nur zwei Phasengrenzlinien in diesem Bereich verwendet und auf die durch die Hysterese verursachten Grenzen verzichtet.

Im Vergleich zur a -Achse ist für $B \parallel b$ -Achse lediglich ein Übergang bei ca. 15 T bei tiefen Temperaturen in Form eines Sprunges zu sehen, der sich mit steigender Temperatur zu niedrigeren Feldern verschiebt und dabei ausschmiert. Auch hier wurde die Phasengrenze aus der größten Steigung in $\partial M / \partial B$ bestimmt. Der Absolutwert für die maximale Magnetisierung bei $B \parallel b$ -Achse liegt bei der 4 K Messung genau wie bei der 10 K Messung bei $\sim 1.3 \mu_B$ pro U-Atom. Vor und nach dem Übergang hat die Magnetisierung für $B \parallel b$ einen leichten linearen Anstieg. Nach erreichen

des Maximalfeldes tritt zwar eine Hysterese in den Messungen entlang der b -Achse auf, aber erst für Temperaturen größer 15 K sorgt diese Hysterese für einen Unterschied bei der Bestimmung der Phasengrenze aus den Messungen für field-up- oder field-down-sweep. Für Messungen < 15 K fällt der Sprung von field-up- und field-down-sweeps unmittelbar zusammen (vergleiche 10 K Messung $B \parallel b$). Diese Hysterese wurde wie oben bereits erwähnt auch von Takeuchi et al in Ref. [133] beobachtet.

Die Messungen der Magnetisierung für $B \parallel c$ wurden in kleinen Temperaturschritten um T_N durchgeführt und sind in Abb. 6.16 dargestellt. Weder in der antiferromagnetischen Phase oder in der Nähe des erwarteten Phasenüberganges bei ~ 26 K konnte eine Anomalie beobachtet werden. Wie auch schon bei der Messung des Magnetowiderstandes für $B \parallel c$ scheint die Magnetisierung entlang dieser Achse (bis auf einen moderat linearen Anstieg bis $0.4 - 0.5 \mu_B$ pro U-Atom) keine zusätzlichen magnetischen Signaturen zu besitzen. Dadurch, dass bis zu einem Feld von 65 T ohne beobachtbaren Phasenübergang gemessen wurde, ergibt sich ein Anisotropiefaktor von größer als 5 bezüglich der Magnetisierung, wenn man die c -Achse mit den Phasenübergängen für $B \parallel b$ vergleicht.

Analog zu den Messungen an UPt_2Si_2 , um die Verbindung zwischen strukturellen und magnetischen Eigenschaften von $U_2Rh_3Si_5$ genauer zu untersuchen, wurden an den Proben entlang der drei Kristallachsen axiale Magnetostruktionsmessungen bei festen Temperaturen durchgeführt. Entlang der c -Achse konnte für keine Temperatur bis 65 T eine Anomalie im Magnetostruktionsverlauf nachgewiesen werden, weshalb hier die Beschreibung lediglich auf die Messungen entlang der a - und b -Achse beschränkt wird. Die Ergebnisse der Messungen für $B \parallel a$ wurden in Abb. 6.18 durch 5 exemplarische Messungen gegen das angelegte Magnetfeld dargestellt. Die jeweiligen Messungen weisen einen negativen Microstrain auf und wurden zueinander aus der Nulllage verschoben dargestellt. Das Rauschlevel ist sehr groß und es sind Anomalien in den jeweiligen Messungen zu sehen, die keinem in der Magnetisierung beobachteten Phasenübergang unmittelbar zugeordnet werden können. Das verrauschte Signal und die unspezifischen Signaturen bei den Phasenübergängen lassen auf einen Torque-Effekt schließen, d.h., die Probe

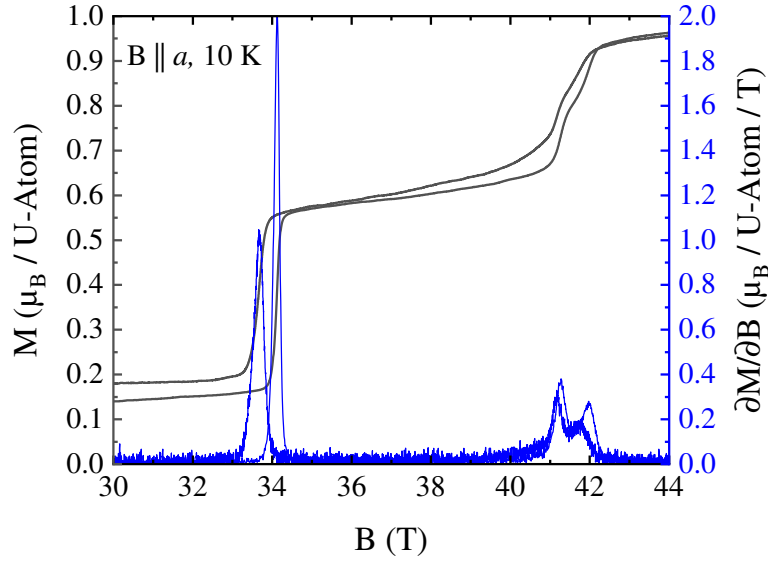


Abbildung 6.17.: Magnetisierung von $U_2Rh_3Si_5$ und Bestimmung der Phasengrenzen durch die Maxima von $\partial M/\partial B$. Bei der gezeigten Messung handelt es sich um einen Teilausschnitt der Magnetisierungsmessung entlang der kristallographischen a -Achse bei 10 K; für Details siehe Text.

spürt im Experiment durch magnetokristalline Anisotropie ein magnetisches Torque, welches zu einer Verdrehung der Probe im Feld führt. Durch die Bewegung der Probe im Feld wird dabei das experimentelle Rauschen erhöht. Weiterhin liegt mit der Verdrehung der Probe das Feld nicht mehr entlang der kristallographischen Hauptachse an, was letztlich bei hinreichender magnetokristalliner Anisotropie zu abweichenden kritischen Felder führt. Aus diesem Grund sind die Absolutwerte und im folgenden bestimmten Phasengrenzen für $B \parallel a$ mit äußerster Vorsicht zu betrachten, da der oben beschriebene Torque-Effekt gerade bei hohen Feldern (> 35 T) schwer zu interpretierbare Auswirkung hat. Darüber hinaus wird dieses Argument durch die Tatsache gestützt, dass die a -Achsen-Probe sich in hohen Feldern von der Mess-Fiber gelöst und diese sogar zerstört hat.

Obwohl die Messungen also unregelmäßige extrinsische Signaturen aufweisen, sind bei bestimmten Anomalien gewisse Systematiken zu erken-

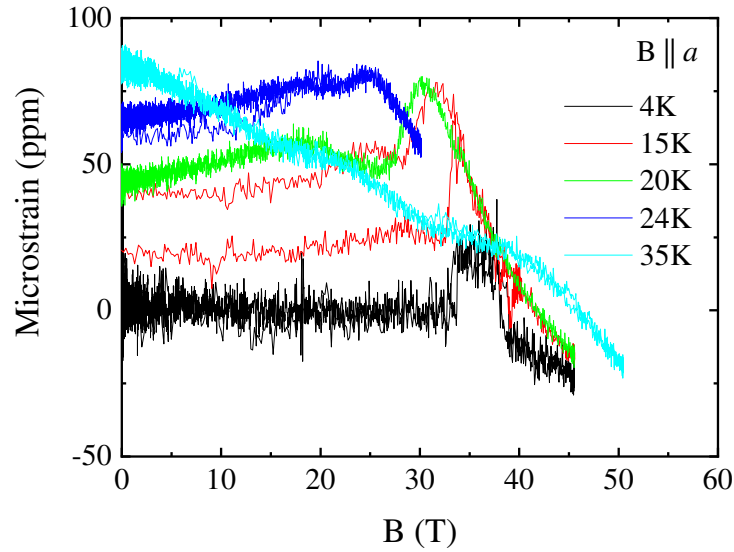


Abbildung 6.18.: Magnetostraktion von $U_2Rh_3Si_5$ für unterschiedliche Temperaturen in gepulsten Magnetfeldern bis 50 T mit $B \parallel a$. Die Daten wurden für die Übersichtlichkeit entlang der y-Achse verschoben; für Details siehe Text.

nen, sofern diese Punkte mit den Magnetisierungsdaten (stets unter Berücksichtigung der interpretativen Einschränkungen der Microstrain-Daten) verglichen werden. Betrachtet man den Microstrain für $B \parallel a$ bei 4 K, so fällt dieser leicht zu höheren Feldern ab und geht bei ca. 34 T in ein plateauartiges Maximum über. Das Ende dieses Maximums liegt in der Nähe von 40 T. An diesen beiden Stellen ist eine leichte Hysterese zwischen up- und down-sweep zu verzeichnen. Durch eine grafische Extrapolation der Verläufe vor, während und nach dem Maximum und deren Schnittpunkt mit Linien entlang der Sprünge wurden die jeweiligen Phasengrenzen abgelesen (vgl. Abb. 6.20). Mit zunehmender Temperatur fallen die Plateauränder zu einem einzigen Maximum zusammen, was sich in ein Zusammenlaufen der Phasengrenzlinien äußert. Da allerdings nur die ersten Punkte beim Start des Maximums mit den Datenpunkten der Magnetisierung konsistent sind, wird auf eine Interpretation der oberen Phasengrenzen aus der Magnetostraktion von $B \parallel a$ aufgrund des Torque-Effektes verzichtet.

Die Magnetostruktionsmessung entlang der b -Achse sind durch fünf exemplarische Datensätze für verschiedene Temperaturen bis 60 K in Abb. 6.19 dargestellt. Auch diese Daten wurden für die Übersichtlichkeit aus der Nulllage gegeneinander verschoben. Die Ergebnisse weisen ein deutlich geringeres Rauschlevel als die Messungen entlang der a -Achse auf. Außerdem sind in diesem Fall keine Signaturen zu erkennen, die durch extrinsische Einflüsse der Messung verursacht werden. Da die b -Achse elementar der magnetisch leichten Achse entspricht (easy axis) [133], fällt der Torque-Effekt dementsprechend sehr viel kleiner als bei der Messung entlang der a -Achse aus, und führt entsprechend in diesem Fall zu keiner Verfälschung bei der Bestimmung der kritischen Felder. Im allgemeinen ist der Microstrain für alle Temperaturen negativ, wobei ein deutlicher Effekt für alle Messungen erst ab Feldern > 10 T eintritt. Im speziellen ist für die niedrigen Temperaturen eine scharfe Anomalie zu verzeichnen. Dem weitestgehend konstanten Verlauf des Up-Sweeps der 4 K Messung folgt bei $\sim 14 - 15$ T ein sprunghafter Abfall um bis zu -250 ppm, der wiederum mit einem scharfen Knick in ein monoton abfallenden Verlauf übergeht. Dies kann dem selben Phasenübergang zu geschrieben werden, der bereits in der Magnetisierung beobachtet wurde. Für diese Messung findet der gesamte Sprung in einem engen Feldintervall von weniger als einem Tesla statt. Während des field-down-sweeps ist ein hysteretisches Überspringen in Form eines Peaks beim Phasenübergang zu beobachten. Da diese Form von Hysterese nur bei dieser Messung auftritt, wird von einer Diskussion dieser abgesehen. Ab 15 K schmiert dieser Übergang aus, indem der Anfang des Sprunges und der Knick am Ende auseinander laufen. Aus diesem Grund wurden die Phasengrenzen in diesem Fall geometrisch durch die Schnittpunkte der Extrapolation der Verläufe vor dem Sprung, während des Sprunges und nach dem Sprung bestimmt (vgl. Abb. 6.21). Durch die Eintragung der erhaltenen Punkte im magnetischen Phasendiagramm bildet sich ab 15 K ein besonders ausgezeichneter Bereich aus. Außerdem wandern beide Übergänge mit zunehmender Temperatur zu niedrigeren Feldern und die Absolutwerte der Sprunghöhe werden kleiner. Oberhalb von T_N ist lediglich der monotone Abfall des Microstrain zu verzeichnen, ohne Anzeichen für einen weiteren Phasenübergang. Bei allen Messungen ist eine leichte Hysterese zwischen Up- und Down-Sweep zu verzeichnen. Da diese allerdings auch bei der 30 K Messung auftritt, also oberhalb von T_N ,

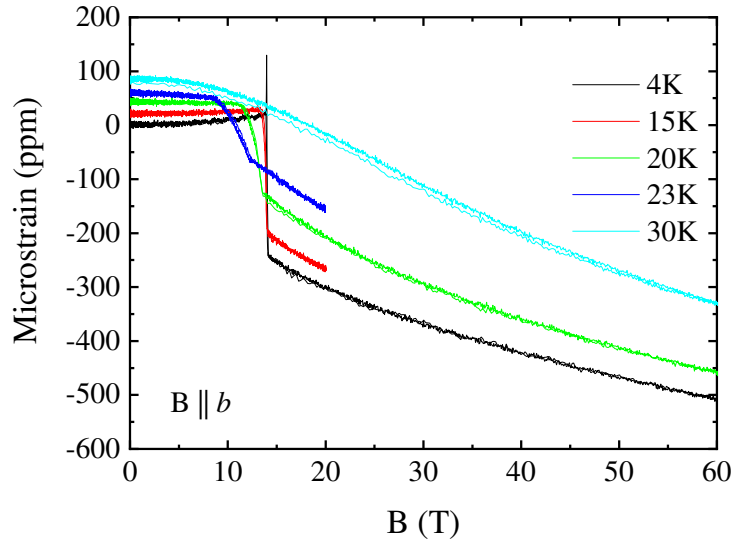


Abbildung 6.19.: Magnetostraktion von $U_2Rh_3Si_5$ für unterschiedliche Temperaturen in gepulsten Magnetfeldern bis 60 T mit $B \parallel b$. Die Daten wurden für die Übersichtlichkeit entlang der y-Achse verschoben; für Details siehe Text.

ist diese Hysterese keiner eindeutigen Materialcharakteristik zuzuordnen. Möglicherweise wird die Hysterese durch einen magnetokalorischen Effekt hervorgerufen.

Mit den zuvor besprochenen Ergebnissen lässt sich nun ein detailreiches magnetisches und höchst ungewöhnliches Phasendiagramm für $U_2Rh_3Si_5$ erstellen. Die signifikanten Punkte der einzelnen Messungen sind in einem B - T -Plot in Abb. 6.22 zusammengefasst. Da für alle Messungen entlang der unterschiedlichen Kristallachsen derselbe Temperaturbereich gilt, und die starke Anisotropie zwischen den Achsen zu einer starken Auffächerung der achsenspezifischen Phasengrenzlinien führt, wurden alle Phasen von $U_2Rh_3Si_5$ in der selben Grafik verarbeitet. Global und qualitativ fallen die Phasengrenzpunkte aus der Magnetisierung M , dem Magnetowiderstand ρ , der Magnetostraktion $\Delta L/L$ weitestgehend zusammen. Dabei sind die für die b -Achse relevanten Phasengrenzlinien durch grüne Linien angezeigt, die Phasengrenzlinien für die a -Achse in orange. Wie bereits bei den einzelnen Messungen lässt sich sehr deutlich

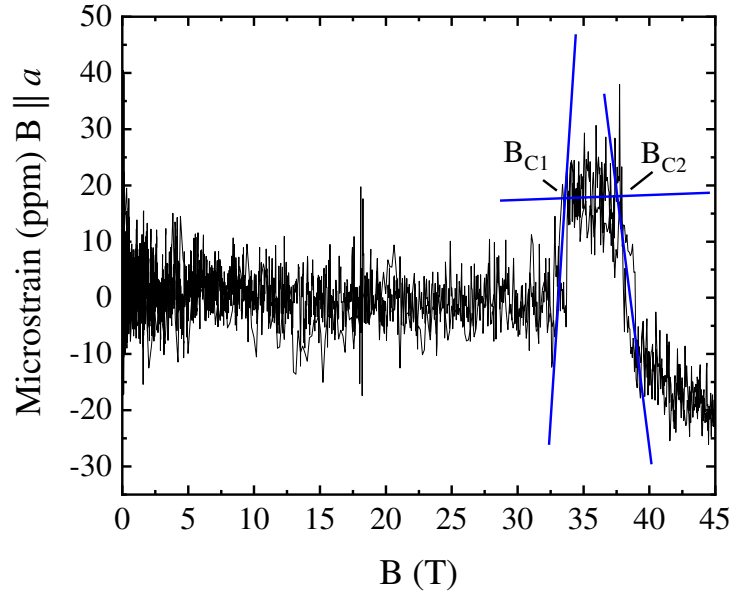


Abbildung 6.20.: Magnetostraktion von $U_2Rh_3Si_5$ entlang der kristallographischen a -Achse bei 4 K und Bestimmung der Phasengrenzen durch grafische Extrapolation der relevanten Bereiche. Die Schnittpunkte der Geraden wurden als Phasengrenzen definiert; für Details siehe Text.

die starke Anisotropie zwischen den verschiedenen Achsen identifizieren (zwischen der b - und a -Achse bis zu einem Faktor 3). Alle Phasen und Phasengrenzlinien der einzelnen Achsen laufen auf eine Temperatur von 26.4 K im Nullfeld zusammen. Allerdings konnte bisher für keine weitere Messung, abgesehen vom spezifischen Nullfeldwiderstand, ein Phasengrenzpunkt für $B \parallel c$ ermittelt werden. Aus diesem Grund wurde eine Phasengrenzlinie für die c -Achse durch eine rote gestrichelte Linie visualisiert. Bis zu einem Feld von 65 T entlang dieser Achse wurde kein Phasenübergang beobachtet, was einen Anisotropiefaktor zwischen b - und c -Achse von mindestens 5 bedeutet. Abgesehen von der fehlenden Phasengrenzlinie entlang der c -Achse sind unsere Ergebnisse konsistent mit den Ergebnissen von Takeuchi et al. (vgl. Abb. 6.4). Darüber hinaus konnten die bisherigen Phasengrenzlinien entlang der a und b -Achse auf den gesamten Temperaturbereich bis zu niedrigen Temperaturen erweitert werden, wodurch sich erstmals ganze Phasengrenzbereiche

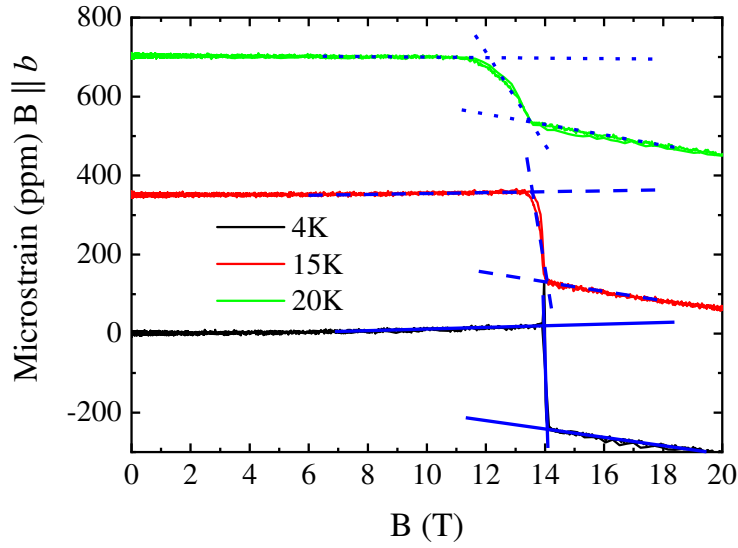


Abbildung 6.21.: Magnetostraktion von $U_2Rh_3Si_5$ entlang der kristallographischen b -Achse und Bestimmung der Phasengrenzen durch grafische Extrapolation der relevanten Bereiche. Die Schnittpunkte der Geraden wurden als Phasengrenzen definiert. Die Daten wurden für die Übersichtlichkeit entlang der y -Achse verschoben; für Details siehe Text.

auszeichnen. Es konnte für die a - und b -Achse der Übergang in die antiferromagnetischen Phase (AFM) erfasst werden und es zeichnen sich weitere ungewöhnliche Phasenbereiche für diese Achsen ab (Phase II und III). Vorweg sei hierbei die auftretende Hysterese innerhalb der Hochfeldmessungen entlang a - und b und die subtile Doppelstruktur während eines Sprunges in der Magnetisierung entlang der a -Achse erinnert. Es bedarf weiterer gezielter Messungen, um diese Effekte genauer zu beleuchten und ggf. besser aufzulösen.

Signifikanter sind dagegen die beiden zusätzlich auftretenden Phasen, die sich über einen großen Temperatur bzw. Feldbereich erstrecken (In Abb. 6.22 als II und III gekennzeichnet). Phase II für $B \parallel b$ erstreckt sich in einem Temperaturbereich von 15 K bis 26.4 K. Diese Phase wurde von Takeuchi et al. nicht identifiziert (vgl. Abb. 6.4) und ist erst durch die Zweistufigkeit des Übergangs in der Magnetostraktion sichtbar. Es

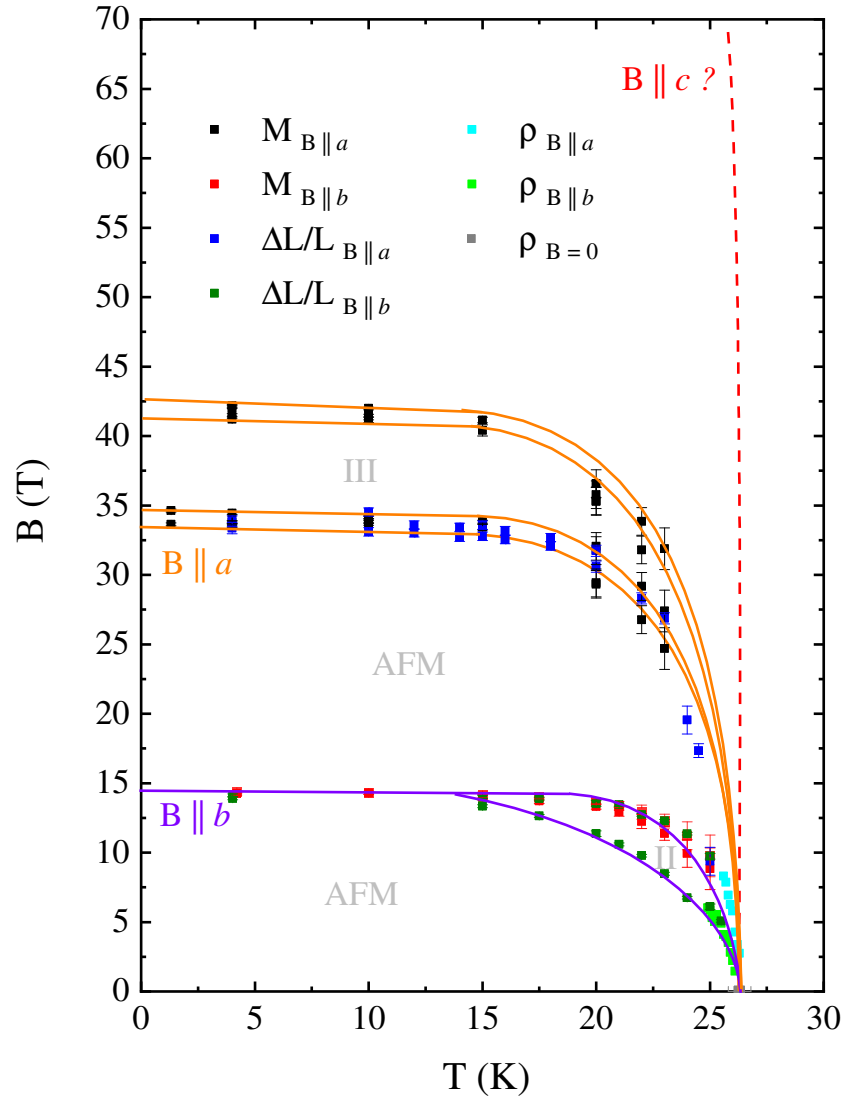


Abbildung 6.22.: Phasendiagramm von $U_2Rh_3Si_5$ aus der Magnetisierung, dem Magnetowiderstand und der Magnetostraktion für die drei Kristallachsen; für Details siehe Text.

kann zum jetzigen Zeitpunkt keine eindeutige Erklärung für das Auftreten dieses Phasenüberganges gegeben werden. Da allerdings die Phase erst bei einer Temperatur > 15 K auftritt, ist zu vermuten, dass zwei oder mehrere energetisch gleichwertige Effekte miteinander konkurrieren und im jeweiligen Temperaturbereich (< 15 K oder > 15 K) dominant sind. Eine Bestimmung der feld- und temperaturabhängigen Ladungsträgerkonzentration via Hall-Effekt (wie in Abschnitt 2.1.6 beschrieben), könnte Aufschluss darüber geben, ob die untere Phasengrenze nicht nur eine Änderung der Struktur mit sich führt, sondern ob zusätzlich eine Veränderung der elektronischen Zustandsdichte zu beobachten ist. Es kann nicht eindeutig identifiziert werden, ob die Phasengrenzpunkte aus dem Magnetowiderstand zur oberen oder unteren Phasengrenze gehören (vgl. Abb. 6.22 grüne Punkte). Deshalb könnte die Information über die Entwicklung der Ladungsträgerkonzentration dazu genutzt werden, um die zukünftigen theoretischen Betrachtungen des Systems im Bezug auf das Kristallfeldschema zu unterstützen und die Schlüsselkomponenten für den ersten Ordnungsphasenübergang genauer zu beleuchten, bzw. herauszuarbeiten, ob der Übergang im Feld durchweg erster Ordnung ist oder sich im Temperaturbereich > 15 K in zwei Phasenübergänge zweiter Ordnung aufspaltet.

Die Phase III für $B \parallel a$ erstreckt sich über den gesamten Temperaturbereich unterhalb von T_N . Durch die fehlenden Datenpunkte aus der Magnetostriktion für den oberen Phasengrenzbereich kann nicht eindeutig bestimmt werden, ob die obere Grenze einem ersten Ordnungsphasenübergang entspricht. Allerdings spricht die auftretende Doppelstruktur in der Magnetisierung und die Hysterese bei Feldern > 40 T dafür, dass beide Phasengrenzbereiche um Phase III einen ersten Ordnungsphasenübergang durchlaufen. Um diese Hypothese zu untermauern sind jedoch weitere magnetische und magnetostrukturelle Messungen in diesen Feldbereichen notwendig. Eine weitere Möglichkeit könnte darin bestehen, bei niedrigeren Feldern ein Aufspalten der Phasengrenzlinien zu messen, was durch die Messung der spezifischen Wärme mit guter Temperaturauflösung eventuell gelingen könnte. Außerdem sollten auch hier Hall-Effektmessungen in hohen Feldern Aufschluss darüber geben, welcher Natur die Phasengrenzbereiche entsprechen. Sollte es sich tatsächlich um zwei separate Phasenübergänge erster Ordnung handeln,

könnten Messungen des Hall-Effektes bis zu Feldern von 34 T genügen, um unterschiedene Charakteristiken in einem Temperatur Bereich zwischen 20 und 27 K zu identifizieren.

Da durch eine fehlende Phasengrenze für $B \parallel c$ keinerlei Extrapolationen an unseren Daten durchgeführt werden kann, um das kritische Feld für die c -Achse zu bestimmen, ist es nur schwierig abzuschätzen, ob Messungen zu noch höheren erreichbaren Feldern ausreichen (< 100 T), um den eventuell ausbleibenden Phasenübergang zu erreichen. Wenn allerdings die Punkte des Phasendiagramms von Takeuchi et al. extrapoliert werden, wie es eingangs auch für $B \parallel a$ durchgeführt wurde, erhalten wir ein kritisches Feld zwischen 70 bis 90 Tesla. Aufgrund der geringen Datendichte könnte sich für die Legitimation weiterer Hochfeldmessungen > 65 T eine Aufnahme weiterer Datenpunkte im Niedrigfeldbereich (> 9 T), durch die Vermessung der spezifischen Wärmekapazität für $B \parallel c$, lohnen.

Durch die starke Anisotropie in der Magnetisierung und dem Magnetowiderstand zwischen den drei Kristallachsen ist darüber hinaus eine Variation der Hall-Konfiguration sinnvoll. Dabei kann die Unterscheidung gemacht werden, ob jeweils der Probenstrom I entlang einer Kristallachse X angelegt wird oder das von außen angelegte Magnetfeld B ($I \parallel X \perp B$ oder $I \perp X \parallel B$). Dadurch werden die elektronischen Eigenschaften unmittelbar mit den magnetischen Eigenschaften in Beziehung gesetzt und die starke Anisotropie des Systems ausgenutzt, sodass die elektronischen Zustände des Systems besser verstanden werden können.

Darüber hinaus kann eine Konfigurationsvariation für die Messung des Magnetowiderstandes einen besonderen Einblick in die Anisotropie liefern. Bisher wurde lediglich der longitudinale Magnetowiderstand gemessen ($I \parallel X \parallel B$). Es liegt also nah, dass eine Messung des transversalen Magnetowiderstandes zusätzliche Erkenntnisse liefert. Dies gilt vor allem, wenn eine der Komponenten entlang der c -Achse gerichtet ist.

Allerdings sollte zuvor in Betracht gezogen werden, die Probenqualität der Kristalle durch Tempern wieder zu verbessern und somit die Anzahl an Mikrorissen im Einkristall zu minimieren oder auf einen Satz neuer

Kristalle zurückgegriffen werden. Denn, wie gezeigt, hat die Hochfeldstudie und die nachträgliche Vermessung in unserem Labor alle Kristalle arg in Mitleidenschaft gezogen und zur Bildung von Mikrorissen in den Einkristallen gesorgt. Gerade für elektrische Messungen ist die Anzahl von Mikrorissen und Korngrenzen im Einkristall von entscheidender Bedeutung, wie der qualitative Unterschied der Ergebnisse zur Messung des Magnetowiderstandes zwischen $I \parallel a$ und $I \parallel b$ gezeigt hat (vgl. Abb. 6.11b und 6.12b). Darüber hinaus könnte die Minimierung von Mikrorissen die magnetischen Signaturen im Magnetowiderstand für $I \parallel c$ wieder sichtbar machen, wodurch die oben erwähnte Datendichte der Phasengrenzpunkte im Niedrigfeldbereich unmittelbar erhöht werden kann.

6.4. Zusammenfassung

Es wurden die Magnetisierung und die Magnetostriktion in hohen Feldern bis 65 T an einkristallinem $U_2Rh_3Si_5$ entlang der drei Kristallachsen durchgeführt. Dadurch konnte das magnetische Phasendiagramm für $U_2Rh_3Si_5$ in einem weiten Feld- und Temperaturbereich erstellt werden. Die Messungen werden durch nachträgliche Untersuchungen in unserem Labor unterstützt. Allerdings konnte während dieser Messungen herausgearbeitet werden, dass die Zunahme von Mikrorissen im Einkristall durch die Messungen selbst eine Interpretation der Daten erschweren kann. Entlang der kristallographischen a - und b -Achse konnte der vollständige Bereich für den Übergang aus der antiferromagnetischen Phase erfasst werden. Allerdings treten weitere Phasen auf, die die komplexe Natur des Phasenüberganges in das antiferromagnetische Regime noch weiter betonen. Jedoch unterstreichen der hysteretische Charakter dieser neuen Phasen die Idee eines ersten Ordnungsphasenübergangs in den Antiferromagnetismus, der bereits durch vorangegangene Messungen beleuchtet wurde [133, 134, 136, 137]. Um der Frage nach dem „bootstrapping“-Effekt genauer auf den Grund zu gehen, ist es nun notwendig eine experimentell gestützte theoretische Betrachtung der Bandstruktur mit einhergehender Kristallfeldaufspaltung und Anisotro-

pie durchzuführen. Da das quasi-orthorhombische Kristallsystem von $U_2Rh_3Si_5$ äußerst komplex ist, ist ein systematisches Aufschlüsseln der auftretenden Effekte und Phasen von theoretischer und experimenteller Seite unabdingbar. Die hier vorgestellten Ergebnisse in Kombination mit vorangegangenen Untersuchungen können dafür allerdings als solide Grundlage verwendet werden.

Anhang A.

Signalqualität und Auflösungsgrenze des Laborsetups

Bei der LR700 handelt es sich um eine lineare Widerstandsmessbrücke, die bei einem AC-Signal mit einer Frequenz von 15.9 Hz Widerstände im Messbereich von $2\text{ M}\Omega$ bis $2\text{ m}\Omega$ abdeckt (vgl. Abb. A.1). Die verwendeten Probenströme reichen hierbei von 1 nA bis 30 mA. Damit können unter idealen Laborbedingungen laut Hersteller Spannungen bis in den $10\text{ }\mu\text{V}$ -Bereich und somit Widerstände bis in den $\text{n}\Omega$ -Bereich gemessen werden. Da dies allerdings nur für idealisierte und optimierte Laboraufbauten des Herstellers gilt, sollen im folgenden Charakterisierungsmessungen vorgestellt werden, die die Bedingungen in unserem Labor abdecken und somit eine Abschätzung für die Güte des Messsignals bei den von uns untersuchten Systemen, den eingestellten Messparametern und den verwendeten Temperaturen liefern. Um die Auflösungsgrenze der LR700 und die spezifischen Messparameter, die während unserer Messungen verwendet werden, zu charakterisieren, wurde mit Silberleitlack ein Stück Indiumdraht in der in Abschnitt 2.2.1 beschriebenen Vier-Punkt-Konfiguration für Bulk-Proben kontaktiert (Durchmesser der Probe $\sim 1\text{ mm}^2$, Abstand der Spannungskontakte $\sim 10\text{ mm}$). Diese Probe wurde stellvertretend für die anderen in dieser Arbeit verwendeten Proben ausgewählt, da Indium zwei wesentliche Charakteristiken mit sich bringt.

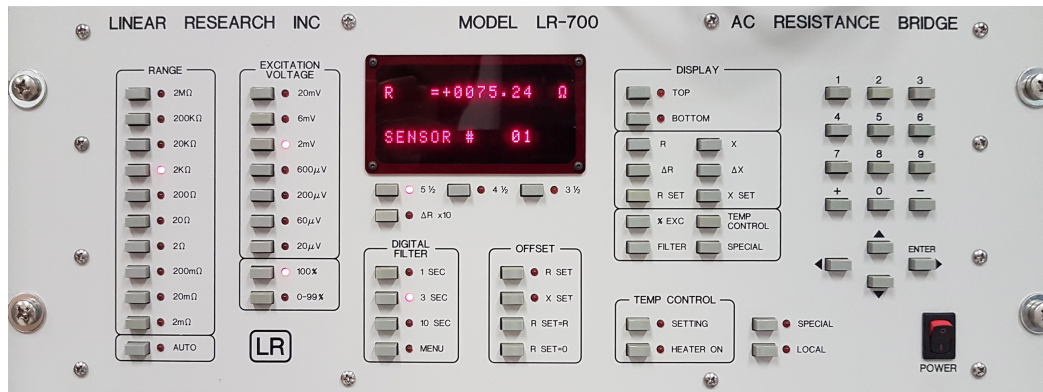


Abbildung A.1.: LR700 Widerstandsmessbrücke. Einstellbar sind neben der Filterzeit, der Widerstandsbereich, die Anregungsspannung und den damit verbundenen Messstrom, sowie diverse Messmodi.

Zum einen ist der Absolutwert für den spezifischen Widerstand und vor allem für den residuellen Widerstand bei tiefen Temperaturen sehr gering (mit geschätztem Geometrievorfaktor im Bereich $\sim 0.05 \mu\Omega\text{cm}$) und zusätzlich hat Indium einen Übergang in eine supraleitende Phase bei 3.40 K [8], was sich in einem Bereich befindet, der leicht mit einem ^4He -Kryostaten gemessen werden kann. Durch den sehr kleinen spezifischen Widerstand ergeben sich reale Messwerte des gemessenen Widerstandes, die sich an der Auflösungsgrenze der LR700 bewegen. Dadurch können diverse Filtereigenschaften der LR700 und der Einfluss des verwendeten Probenstromes in der Nähe der Auflösungsgrenze charakterisiert werden. Der Übergang in die supraleitende Phase dient hierbei als Indikator, wie gut die Probe mit dem Probenraum im thermischen Gleichgewicht ist, und ob eine Variation der Temperaturänderungsrate bei temperaturabhängigen Messungen zu einer signifikanten Störung dieses Gleichgewichtes führt, denn das für die Messungen verwendete Thermometer des Kryostaten befindet sich nicht in unmittelbarer Nähe zur Probe, sondern an der Außenseite des Probenraumes. Durch diese experimentelle Charakterisierung werden alle verwendeten Messparameter, die bei unseren Labormessungen verwendet werden, betrachtet und wir erhalten eine Abschätzung experimenteller Fehler, da alle anderen im Laborbetrieb gemessenen Proben in der Regel einen deutlich größeren Absolutwert für den spezifischen Widerstand besitzen. Im einzelnen

wurden folgende Messungen durchgeführt:

- Umpolung der Spannungskontakte (für die Bestimmung eines messinstrumentinternen Offsets)
- Variation der Filterzeit und des Probenstromes (für die Abschätzung des Rauschens im Messsignal)
- Variation der Temperaturänderungsrate „K/min“ (für die Abschätzung der thermischen Kopplung zwischen Probe und Probenraum)

Die Widerstandsmessungen wurden jeweils in einem Temperaturbereich von 2.3 bis 10 K durchgeführt. Unterhalb einer Temperatur von 3.4 K sollte der gemessene Widerstand der Indiumprobe aufgrund seiner supraleitenden Phase auf Null fallen. Da die LR700 in Verbindung mit einer AC-Vier-Punkt-Konfiguration nicht dafür ausgelegt ist, einen komplett verschwindenden Widerstand zu messen, wurde der vom Gerät angezeigte Offset in Abb. A.2 dargestellt. Gleichzeitig wurde in dieser Abbildung die Messung mit vertauschten Spannungskontakten aufgetragen. Die Umpolung der Spannungskontakte führt zu einem Vorzeichenwechsel des gemessenen Spannungssignals, was durch einen negativen Widerstand signalisiert wird. Dies dient lediglich der Information über die Polung der gemessenen Spannung und hat keine physikalische Aussagekraft. Allerdings kann durch diese Umpolung gezeigt werden, dass der Offset des Widerstandes der supraleitenden Phase für beide Polungen im Betrag nahezu gleich groß ist. Außerdem scheint sich der Offset durch die gesamte Messung bis 10 K zu erstrecken. Das wird dadurch deutlich dass die Differenz der Beträge für beide Polungskonfigurationen verschwindend gering ist (vgl. Abb. A.2 blaue Linie). Dadurch ist gezeigt, dass der Offset, der erst durch die supraleitende Phase auffällt, vom Messgerät selbst verursacht wird und im gesamten Temperaturbereich konstant ist. Dieser Offset ist im Vergleich zu den minimalen Widerstandswerten der Indiumprobe verhältnismäßig groß (Offset: $1.74 \mu\Omega$, Widerstand bei 4 K: $1.87 \mu\Omega$). Dazu muss allerdings berücksichtigt werden, dass im kleinsten Messbereich der LR700 von $2 \text{ m}\Omega$ gemessen wurde. In diesem Bereich ist die digitale Anzeigeauflösung des Gerätes $10 \text{ n}\Omega$, was der letzten Nachkommastelle der Anzeige entspricht. Laut Gerätehersteller ist die

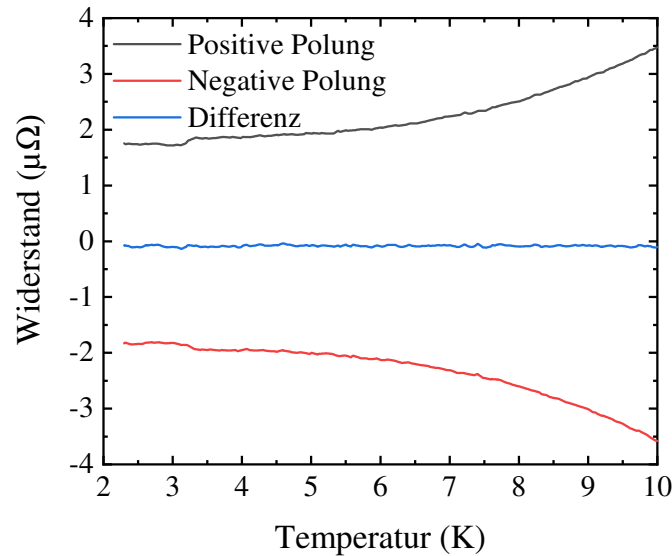


Abbildung A.2.: Mit der LR700 gemessener temperaturabhängiger Widerstand eines Indiumdrahtes bei unterschiedlicher Polung der Spannungskontakte in AC-Vier-Punkt-Konfiguration. Aufgenommen bei einer Temperaturänderungsrate von 1.5 K/min, einer Filterzeit von 3 sec und einem Probenstrom von 30 mA. Die blaue Kurve ist die Differenz der beiden Messungen.

durchschnittliche Genauigkeit für alle Widerstandsbereiche $\pm 0.02\%$ ($\pm 400\text{ n}\Omega$ im $2\text{ m}\Omega$ -Messbereich). Darüber hinaus ergibt sich für den aus den Messungen ermittelten spezifischen Widerstand des Indiums (unter Verwendung der oben erwähnten geometrischen Abmessungen) ein Wert von ~ 20 bis $50\text{ n}\Omega\text{cm}$, was zum einen einen realistischen Wert für Indium bei tiefen Temperaturen darstellt und zum anderen beachtlich klein ist. Da die sonst untersuchten Systeme in der Regel deutlich größere Absolutwerte des Widerstandes besitzen, fällt der Offset dort nicht ins Gewicht.

Sollten zukünftig dennoch Messungen mit der LR700 in einem niedrigeren Widerstandsbereich gemacht werden, so sollte besser auf die Relativwert-Messoption des Gerätes (ΔR -Modus) zurückgegriffen werden. Gerade bei Supraleitern kann in der supraleitenden Phase der

vom der LR700 verursachte Offset ermittelt und durch diese Option im Messsignal bereinigt werden. Dadurch lassen sich wiederum die Absolutwerte in der nicht supraleitenden Phase genauer bestimmen. Im Fall von Indium entspräche dies einen berechneten Widerstand von $\sim 100 \text{ n}\Omega$ bei 4 K, wobei die oben erwähnte Genauigkeit des Geräts nicht außer Acht gelassen werden darf.

Mit unserem Setup lassen sich also elektrische Widerstände bis in den $\text{n}\Omega$ -Bereich zuverlässig messen. Das ist der Grund, warum die Messungen des spezifischen Widerstandes für die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Systeme ein so geringes messgerätspezifisches Rauschen aufweisen, da die Absolutwerte der gemessenen Widerstände von MnB_4 , MnSi , NbFe_2 , UPt_2Si_2 und $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$ um einige Größenordnung höher sind.

Daraus lässt sich wiederum schließen, dass - falls das gemessene Widerstandssignal ein hohes Rauschlevel besitzt - die Ursache entweder intrinsischer Natur ist oder die Messleitungen einen Defekt haben. Gerade im Fall der Kontaktierung mit Silberleittack kann aufgrund der Oberflächenmorphologie einer Probe oder durch brüchige bzw. defekte Silberleittackverbindungen eine Erhöhung des Rauschlevels erzeugen.

Darüber hinaus erhöht es das Rauschniveau signifikant, wenn der gewählte Probenstrom zu gering ist. Aus diesem Grund wurden Messungen mit unterschiedliche Filterzeiten der LR700 bei einer Messung mit zu geringem Probenstrom in Abb. A.3 dargestellt. Die gemessenen Datensätze wurden der Übersichtlichkeit halber gegeneinander versetzt aufgetragen. Die gestrichelte rote Linie visualisiert den Literaturwert von 3.4 K des Übergangs in die supraleitende Phase von Indium. Die Messungen wurden alle mit der gleichen Temperaturänderungsrate von 1.5 K/min durchgeführt. Dadurch ist sichergestellt, dass die verwendeten Filterzeiten von 1, 3 und 10 sec keinen signifikanten Einfluss auf die relativen Verläufe haben. Das wird durch den Übergang bei 3.4 K deutlich. Trotz unterschiedlicher Filterzeiten befinden sich die Übergänge in die supraleitende Phase der jeweiligen Messungen an gleicher Stelle. Lediglich das Rauschen wird mit geringerer Filterzeit größer, weshalb eine Zuordnung des Überganges für eine Filterzeit von 1 sec etwas schwieriger fällt, da der Übergang durch den großen LR700 bedingten Offset und

den geringen Änderungen der absoluten Widerstände vom Rauschen nahezu überdeckt wird. Bei einer Filterzeit von 3 und 10 sec ist der Übergang allerdings deutlich erkennbar.

Damit das eigentliche Messsignal nicht im Vorfeld durch eine zu große Filterzeit eventuell doch beeinflusst wird, werden alle Messungen in unserem Setup mit einer Filterzeit von 3 sec durchgeführt. Unter Beachtung der verwendeten Temperaturänderungsraten und dem abgeschätzten Fehler des Thermometer für die Absolutwerte der Temperatur des Kryostaten von ~ 0.1 K im relevanten Temperaturbereich scheint diese Filterzeit eine geeignete Wahl. Darüber hinaus ist zu beobachten, dass die Wahl des Probenstromes einen deutlich größeren Effekt auf das Rauschen im Messsignal hat (Grüne Linie) als die Wahl der Filterzeit. Selbst bei der verwendeten Filterzeit von 3 sec ist die Messung mit $10\ \mu\text{A}$ Probenstrom verrauschter als die Messung mit 30 mA und 1 sec Filterzeit. Außerdem sieht man am Offset zu den anderen Messungen, dass ein zu geringer Probenstrom zusätzlich einen Effekt auf die Absolutwerte des Widerstandes verursacht, denn alle Messungen wurden um den selben konstanten Faktor in der Auftragung gegen einander verschoben. Bei den Messungen mit der LR700 muss also vorher sichergestellt werden, dass der Probenstrom bestmöglich ausgewählt wird und es muss geprüft werden ob ggf. dadurch bereits eine Rauschminimierung erzeugt werden kann. Allerdings muss bei Nanostrukturen und Proben mit großem Widerstand darauf geachtet werden, dass zu große Probenströme einen Heizeffekt in der Probe verursachen können und auf diese Weise bei besonders kleinen Nanostrukturen sogar eine Zerstörung derselben erreicht werden kann.

Als letzten Punkt wird die thermische Ankopplung der Probe genauer beleuchtet. Dafür wurde in Abb. A.4 der gemessene Widerstand an Indium bei unterschiedlichen Temperaturänderungsraten aufgetragen. Da sich die Probe ein Stück weit entfernt von dem verwendeten Thermometer befindet, kann es bei einer schlechten thermischen Ankopplung und der Begrenzung durch die Wärmeleitung des Probenträgers zu einer Verschiebung der eigentlichen Probentemperatur kommen (vgl. Abb. A.5). Da die Wärmekapazität des Systems selbst auch temperaturabhängig ist, muss bei Messungen zu höheren Temperaturen von > 100 K

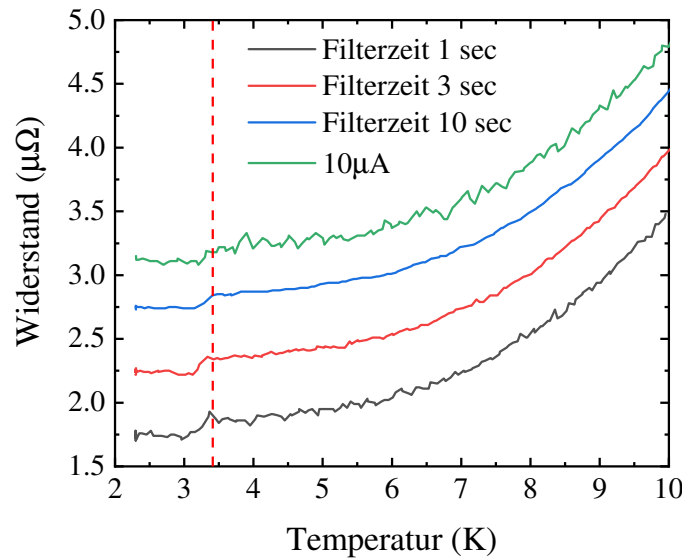


Abbildung A.3.: Mit der LR700 gemessener temperaturabhängiger Widerstand eines Indiumdrahtes und unterschiedlich eingestellten Filterzeiten und Probenströmen. Aufgenommen bei einer Temperaturänderungsrate von 1.5 K/min. Bei den variierten Filterzeiten wurde ein Probenstrom von 30 mA verwendet und bei der Messung mit 10 mA Probenstrom wurde eine Filterzeit von 3 sec benutzt. Die rote gestrichelte Linie zeigt den Übergang in die supraleitende Phase bei 3.4 K. Die Daten wurden für die Übersichtlichkeit entlang der y-Achse verschoben.

darauf geachtet werden, dass dem System mehr Zeit gegeben wird um relaxieren zu können, sodass die Probe jederzeit auch die Temperatur des Thermometers besitzt. Da bei den meisten Messungen im Rahmen dieser Arbeit aber eher der Tieftemperaturbereich von Bedeutung ist, wird in dieser Charakterisierung nur der Einfluss der Temperaturänderungsrate bei niedrigen Temperaturen betrachtet. Die Messungen zeigen bis zu einer Temperaturänderungsrate von 1.5 K/min nahezu den selben Verlauf und liegen gut übereinander. Auch der Punkt des supraleitenden Überganges wird von allen Messungen getroffen. Auffällig ist jedoch unter Vernachlässigung des Rauschens, dass nur bei der Messung mit einer Temperaturänderungsrate von 0.5 K/min (schwarze Linie) der

obere Teil des Sprunges perfekt auf den Literaturwert (rote gestrichelte Linie) fällt. Zu höheren Temperaturen zeigt die Messung mit 2.5 K/min eine leichte Verschiebung im Vergleich zu den anderen Messungen, was dafür spricht, dass bei solch einer Temperaturänderungsrate die Probe thermisch nicht mehr ausreichend mit dem restlichen System gekoppelt ist. Die Probe hat in dem Fall nicht mehr die selbe Temperatur wie das Thermometer. Da wie oben erwähnt durch die Wärmeleitung und der temperaturabhängigen Wärmekapazität das System an sich zu höheren Temperaturen länger benötigt, um ins thermische Gleichgewicht zu kommen, sollte der Effekt zu höheren Temperaturen noch mehr ins Gewicht fallen. Auch bei einer Temperaturänderungsrate von 1.5 K/min kann nicht völlig ausgeschlossen werden, dass es zu höheren Temperaturen zu solchen Effekten kommt, was bei der Interpretation der Daten in einem Temperatursweep bis 300 K stets berücksichtigt werden muss. Um diesen Effekt zu eliminieren, und falls dennoch Absolutwerte oder Anomalien in diesem Bereich betrachtet werden müssen, muss ggf. auf Einzelmessungen bei fixer Temperatur zurückgegriffen werden, bei denen man dem System genug Zeit zum thermischen Relaxieren gibt. Für Effekte, die in einem großen Temperaturbereich stattfinden, und relative Verläufe bei tiefen Temperaturen reichen allerdings eine Temperaturänderungsrate von 1.5 K/min aus. Sind die Anomalien sehr scharf, wie beim Übergang von Indium, sollte auf eine Temperaturänderungsrate von 0.5 K/min zurückgegriffen werden.

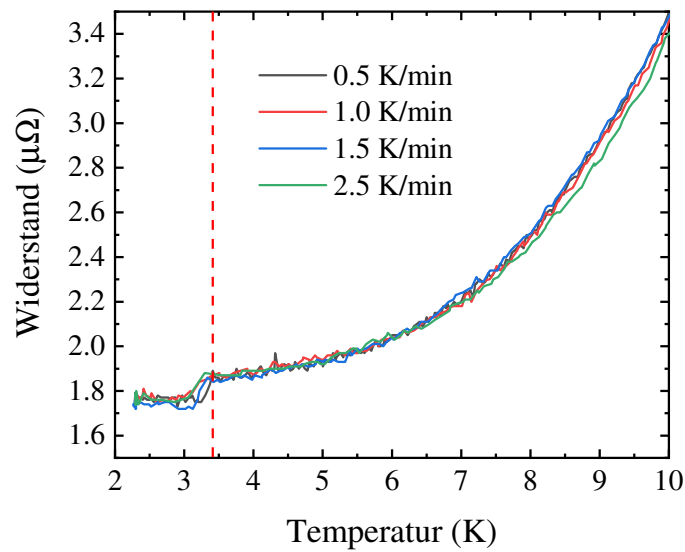


Abbildung A.4.: Mit der LR700 gemessener temperaturabhängiger Widerstand eines Indiumdrahtes bei verschiedenen Temperaturänderungsraten. Aufgenommen bei einer Filterzeit von 3 sec und einem Probenstrom von 30 mA. Die rote gestrichelte Linie zeigt den Übergang in die supraleitende Phase bei 3.4 K.

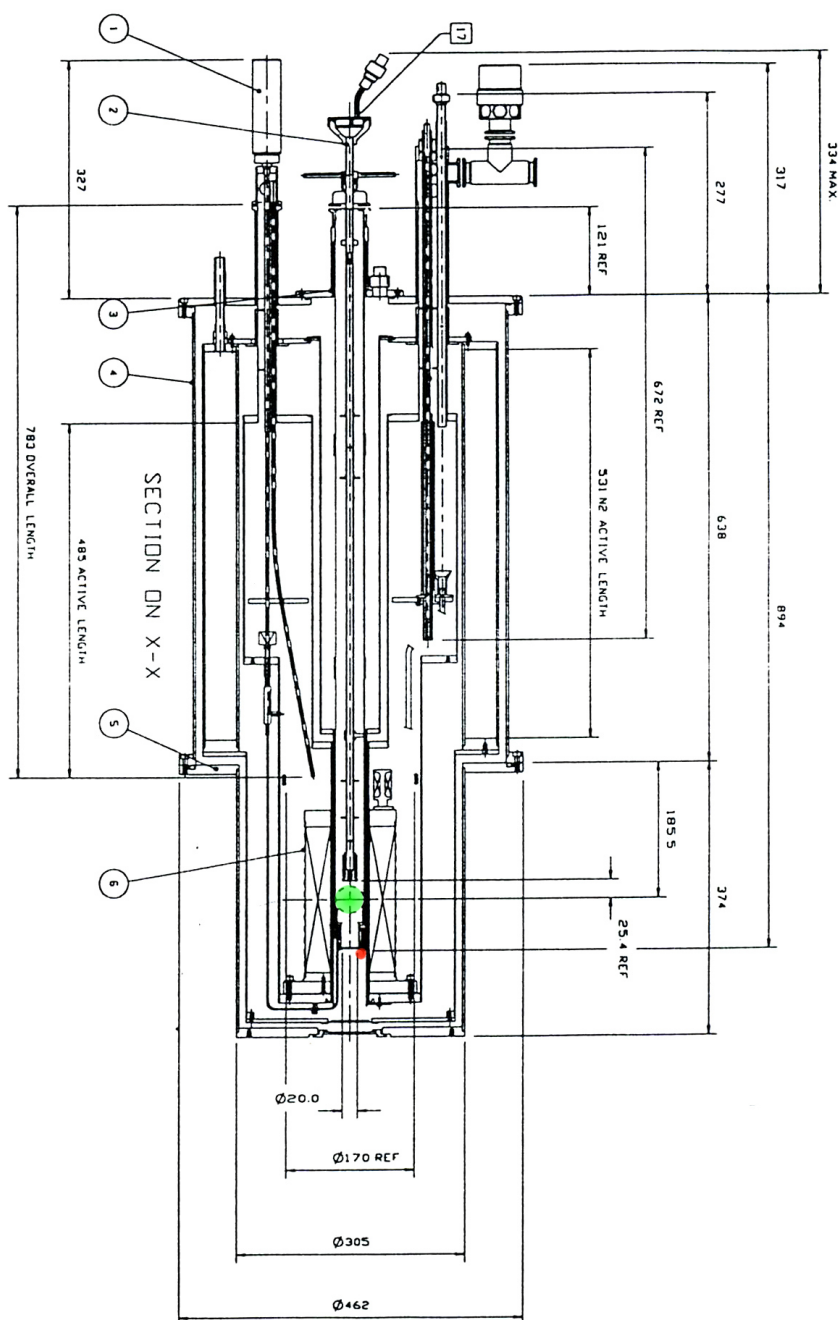


Abbildung A.5.: Technische Zeichnung des verwendeten Kryostaten („Spectromag“ der Firma Oxford Instruments). Der ^4He -Kryostat ist mit einem Variable Temperature Insert (VTI) ausgestattet. Dies erlaubt Messungen im Probenraum (grün) zwischen 1.5 bis 300 K. Der Probenraum wird thermisch durch einen Block aus Kupfer (unterer Bereich des VTI) an das Thermometer (rot) gekoppelt.

Anhang B.

Phasenübergang-Hochfeld-Analyse am Beispiel NbFe_2

Wir haben Hochfelduntersuchungen an einkristallinem stöchiometrischen NbFe_2 durchgeführt. Dieses Material ist im Rahmen von Untersuchungen der Quantenkritikalität in itineranten Ferromagneten diskutiert worden [139–142]. Im Kontext der vorliegenden Arbeit wurde der spezifische Widerstand in hohen Magnetfeldern genauer beleuchtet. Die Experimente fanden im Laboratoire National des Champs Magnétiques Intenses in Toulouse, Frankreich statt. Der spezifische Widerstand von einkristallinem NbFe_2 wurde in extern angelegten Magnetfeldern entlang der kristallografischen c -Achse bis 15.5 T in einem Temperaturbereich zwischen 1.4 - 55 K gemessen. In diesem Kapitel liegt der Fokus auf der Extrahierung der Übergangstemperatur T_N aus den Magnetowiderstandsdaten, denn T_N kann im temperaturabhängigen spezifischen Widerstand von stöchiometrischem NbFe_2 praktisch nicht identifiziert werden.

In den vergangenen Jahren wurden physikalische Eigenschaften von modernen magnetischen Materialien in der Nähe der quantenkritischen Punkte untersucht, indem auf verschiedene Art und Weise die die magnetischen Grundzustandseigenschaften bestimmenden Energieskalen

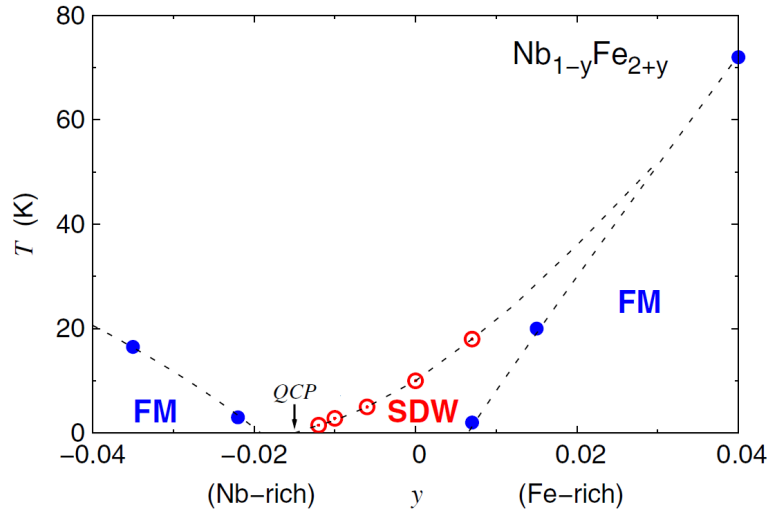


Abbildung B.1.: Magnetisches Phasendiagramm für unterschiedliche stöchiometrische Zusammensetzung von Nb_{1-y}Fe_{2+y}. Aus Ref. [149] entnommen.

im Bereich des quantenkritischen Punktes kontrolliert verändert wurden. Als Beispiel sei hier das *f*-Elektronen-Übergangsmetall YbRh₂Si₂ erwähnt [143–148]. Hierbei ist eine Form des Studiums die Magnetotransportcharakteristiken durch die Messung des Magnetowiderstandes zu untersuchen. Auf diese Weise kann die Feldabhängigkeit der charakteristischen Energieskalen genauer betrachtet werden. Als Gegensatz zum *f*-Elektronen-Übergangsmetall YbRh₂Si₂ ist NbFe₂ ein Beispiel für ein itinerantes System in der Nähe eines quantenkritischen Punktes. Es wurde gezeigt, dass die Nb/Fe Stöchiometrie im Sinne Nb_{1-y}Fe_{2+y} als Funktion des Kontrollparameter *y* für unterschiedliche Grundzustandsphasen sorgt [139–142]. Nb-reiches Material hat einen ferromagnetischen Grundzustand, Material nahe der stöchiometrischen Zusammensetzung ordnet in einer „spin density wave“ (SDW) mit kleinem Moment. Dagegen ordnet Fe-reiches Material wieder ferromagnetisch [139–142]. Zwischen dem Nb-reichen und dem stöchiometrischen Material wird somit magnetische Ordnung zu *T* = 0 K unterdrückt, hier befindet sich ein quantenkritischer Punkt/Bereich (vgl. Abb. B.1). Kürzlich wurden die unterschiedlichen Phasen und Phasengrenzen durch μ SR und ESR-Experimente herausgearbeitet [150]. Im Kontext des Auftretens multipler Energieskalen in

der Nähe der Quantenkritikalität scheint es, dass sich ein itinerantes System wie NbFe₂ unterschiedlich im Vergleich zu bspw. YbRh₂Si₂, als System mit lokalem Moment, verhält. Vor diesem Hintergrund haben wir Hochmagnetfeldstudien von einkristallinem stöchiometrischen NbFe₂ durchgeführt. Hier wird die Analyse des Magnetowiderstandes und deren Ergebnisse in Felder bis 15.5 T diskutiert.

Die Bestimmung des spezifischen elektrischen Widerstandes und des Magnetowiderstandes wurde im Laboratoire National des Champs Magnétiques Intenses in Toulouse, Frankreich, durchgeführt. In unseren Untersuchungen wurden ein gut-charakterisierter und einkristalliner stöchiometrischer NbFe₂ Kristall von hoher Probenqualität verwendet (Ordnungstemperatur in den SDW-Zustand $T_N=12$ K) [139–142]. Der Kristall wurde darüber hinaus durch vorangegangene μ SR-Experimente charakterisiert [150]. Für die Messung des magnetfeldabhängigen spezifischen Widerstandes wurde auf eine Vier-Punkt-Konfiguration mit punktgeschweißten Kontakten zurückgegriffen. Das externe Magnetfeld $B \parallel I$ bis 15.5 T wurde entlang der kristallographischen c -Achse (easy magnetic axis) in einem Temperaturbereich zwischen 1.4 - 55 K angelegt.

Die Feldabhängigkeit des elektrischen spezifischen Widerstandes ρ entlang der c -Achse von stöchiometrischen NbFe₂ ist in Abb. B.2 für unterschiedliche Temperaturen dargestellt. Aus diesen Messungen kann die Temperaturabhängigkeit für feste Magnetfelder extrahiert werden. Der spezifische Widerstand bei Nullfeld aus den Daten zeigt keinen klaren Hinweis auf einen Phasenübergang in die SDW-Phase (Inset von Abb. B.2). Das ist konsistent mit vorangegangenen Untersuchungen, wo der Nullfeldwiderstand qualitativ keine klaren Signaturen bei T_N zeigt [139, 140, 149]. Qualitativ kann die Abwesenheit dieser Signatur in Form eines Knicks oder einer Anomalie im spezifischen Widerstand durch das sehr kleine magnetische Moment in der SDW-Phase erklärt werden. Dieses magnetische Moment wurde in Ref. [150] zu 0.001-0.01 μ_B bestimmt. In Feldern von 15 T wird das Fermi-Flüssigkeitsverhalten dominant, was durch die spezifische T -Abhängigkeit im magnetfeldabhängigen Widerstand deutlich wird [140]. In Anbetracht der Feldabhängigkeit des Magnetowiderstandes sieht man unterhalb des SDW-Phasenüberganges

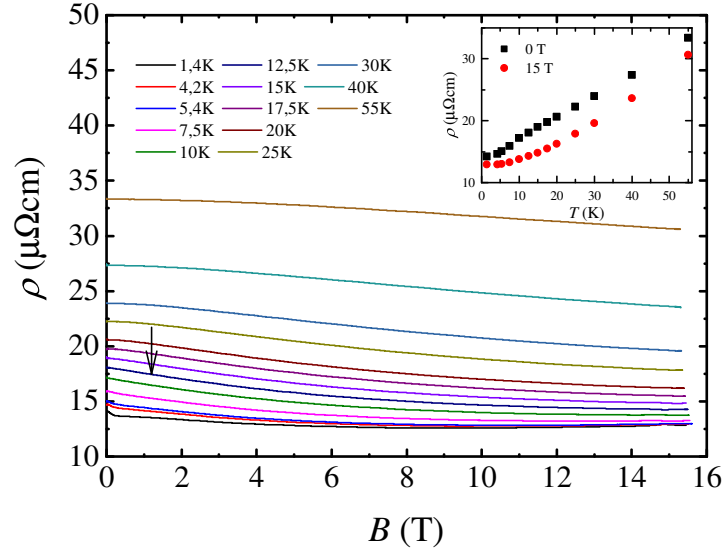


Abbildung B.2.: Magnetische Feldabhängigkeit des spezifischen Widerstandes von NbFe₂ mit angelegtem Magnetfeld $B \parallel I$ entlang der c -Achse bis 15.5 T in einem Temperaturbereich zwischen 1.4 - 55 K. Das Inset zeigt die Temperaturabhängigkeit des spezifischen Widerstandes von NbFe₂ in Nullfeld und bei 15 T (aus den Magnetowiderstandsmessungen extrahiert). Aus Ref. [87] entnommen.

einen Abfall von ρ für kleine Magnetfelder, wobei oberhalb von T_N (dunkelblaue Linie in Abb. B.2 durch den Pfeil gekennzeichnet) für $B \rightarrow 0$ $d\rho/dB$ Null ist.

Für eine weitere Analyse für das Verhalten des spezifischen Widerstandes in Magnetfeldern haben wir eine normalisierte Art der Daten verwendet, indem $\Delta\rho/\rho = (\rho(T, B) - \rho(T, 0))/\rho(T, 0)$ berechnet wurde.

Mit $\Delta\rho/\rho$ ist es nun möglich die Messungen des Magnetowiderstandes in Form eines 3D/Konturplottes aus einem anderen Blickwinkel zu betrachten (siehe Abb. B.3), denn hier dominiert die Temperaturabhängigkeit von ρ nicht mehr den Magnetowiderstand. Überraschenderweise sieht man, dass diese Art der Auftragung eine Unterdrückung der Spinfluktuationen oberhalb des Überganges in den SDW-Zustand visualisiert.

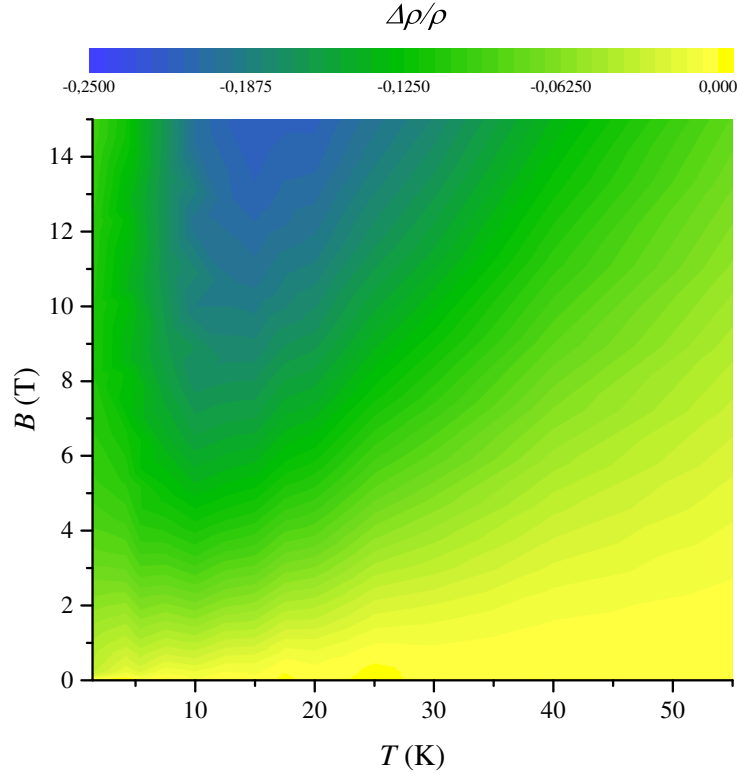


Abbildung B.3.: 3D/Konturplot von $\Delta\rho/\rho$ als Funktion des Magnetfeldes bis 15 T und im Temperaturbereich zwischen 1.4 - 55 K; für Details siehe Text. Aus Ref. [87] entnommen.

Bei hohen Magnetfeldern und in einem Temperaturbereich zwischen 10 K und 20 K ist ein ausgeprägtes Minimum von $\Delta\rho/\rho$ („blaue Insel“ in Abb. B.3), bei dem der normalisierte Magnetowiderstand um 21% abfällt.

Die Form dieses Minimums ist keilförmig, wobei die Spitze des Keils in der Nähe von 12 K liegt. Das ist konsistent mit der SDW-Übergangstemperatur von $T_N=12$ K, die durch vorangegangene Messungen der Magnetisierung bestimmt wurde [139, 140]. Die Form der blauen Insel scheint die Unterdrückung der Spinfluktuationen im Vergleich zum Nullfeldwiderstand widerzuspiegeln, einhergehend mit einem starken Effekt genau über T_N . Dass die Unterdrückung der Spinfluktuationen

im Hochfeldbereich dazu verwendet werden kann, um T_N zu bestimmen, ist qualitativ konsistent mit der Theorie von Spinkorrelationen und ihren Effekt auf magnetische Materialien [151]. Hierbei ist das Widerstandsverhalten in der Nähe einer kritischen Temperatur T_N (d.h. $d\rho/dT$) vergleichbar mit der spezifischen Wärmekapazität c_p . In hohen Magnetfeldern ist die Unterdrückung der Spinfluktuationen (d.h. in $d\rho/dT$ und c_p) besonders ausgeprägt beim kritischen Punkt, was sich bei einer normalisierten Auftragung des Magnetowiderstandes als ein starker Effekt bei T_N herausstellt. Überraschenderweise zeigt nun also diese Art der Auftragung und die Unterdrückung der Spinfluktuationen die Existenz eines magnetischen Phasenüberganges, obwohl im Nullfeldfall keine ausgeprägte Anomalie in ρ oder in $d\rho/dT$ zu beobachten ist.

Diese Art der Analyse und Auftragung zeigt, dass der normalisierte Magnetowiderstand dazu verwendet werden kann, um den Bereich eines magnetischen Phasenüberganges zu identifizieren. Damit war es erstmals möglich, die magnetische Übergangstemperatur T_N von NbFe₂ aus spezifischen Widerstandsmessungen zu extrahieren, in diesem Fall von der paramagnetischen in eine SDW-geordnete Phase.

Abbildungsverzeichnis

2.1.	Spezifischer Widerstand von elementaren Festkörper und theoretischer Fit des spezifischen Widerstandes.	28
2.2.	Temperaturabhängiger spezifischer Widerstand im Nullfeld von Nickel und Palladium.	29
2.3.	Anwendung der RPA-Theorie auf ZrZn_2	31
2.4.	Theoretische Vorhersage aus der SCR-Theorie und Messung von $R_2(B)/R_2(B=0)$ für Sc_3In als Beispiel für ein schwach ferromagnetisches System	32
2.5.	Hochmagnetfeldmessung von $R_2(B)/R_2(B=0)$ für MnSi als Beispiel für ein beinahe ferromagnetisches System . .	33
2.6.	Spezifischer Widerstand von reinem Cu und Cu mit magnetischen Fe-Verunreinigungen.	36
2.7.	Für Widerstandsmessungen kontaktierte Probe $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$ in Bulk-Form.	43
2.8.	Kupferprobenträger für elektrische Transportmessungen mit kontaktierter Indiumprobe.	44
2.9.	Schema der Kontaktierung für Widerstandsmessungen .	45
2.10.	Visuelle Darstellung des Messsetups (Schematische Zeichnung des Probenhalters und Bild einer kontaktierten Probe).	46
2.11.	Nanostrukturierte MnSi -Dünnschichtprobe mit einer Filmdicke von 30nm und einer Breite von 50 μm	49
2.12.	Chipcarrier mit eingeklebtem MnSi -Probenchip.	51
3.1.	Kristallstruktur von MnB_4	54
3.2.	Berechnete elektronische Zustandsdichten von MnB_4 und MnB_4 mit einer angenommenen FeB_4 -Struktur	55
3.3.	Berechnete elektronische Zustandsdichten von MnB_4 für den dimerisierten und un-dimerisierten Fall.	56

3.4.	Magnetisierung von zwei polykristallinen MnB_4 -Proben bei einer Temperatur von 2 K.	57
3.5.	Suszeptibilität von zwei polykristallinen MnB_4 -Proben. .	58
3.6.	Spezifische Wärmekapazität von polykristallinem MnB_4	59
3.7.	Bild von zwei MnB_4 -Einkristallen.	60
3.8.	Temperaturabhängiger spezifischer Widerstand von zwei einkristallinen MnB_4 -Proben.	61
3.9.	Temperaturabhängige Suszeptibilität von einkristallinem MnB_4	63
4.1.	Nullfeldwiderstand unterschiedlicher MnSi-Proben . . .	70
4.2.	Magnetisches Moment der MnSi-Einkristalle als Funktion der Temperatur.	72
4.3.	Magnetowiderstand in transversalen Magnetfeldern bis 24 T für einen 30 nm MnSi-Dünnsfilm	73
4.4.	Spezifischer Widerstand in transversalen Magnetfeldern bis 24 T für einen 30 nm MnSi-Dünnsfilm	74
4.5.	Konturplot des Magnetowiderstandes MR in transversalen Magnetfeldern bis 24 T für einen 30 nm MnSi-Dünnsfilm	75
4.6.	Konturplot des Magnetowiderstandes MR in transversalen Magnetfeldern bis 8 T für den Einkristall MnSi . . .	76
4.7.	Konturplot des Magnetowiderstandes MR in longitudinalen Magnetfeldern bis 24 T für einen 30 nm MnSi-Dünnsfilm	77
4.8.	Konturplot des Magnetowiderstandes MR in transversalen Magnetfeldern bis 24 T für einen 10 nm MnSi-Dünnsfilm	78
4.9.	Konturplot des Magnetowiderstandes MR in longitudinalen Magnetfeldern bis 24 T für einen 10 nm MnSi-Dünnsfilm	79
4.10.	Darstellung der Datenanalyse des Magnetowiderstandes MR in longitudinalen Magnetfeldern bis 24 T für einen 10 nm MnSi-Dünnsfilm	81
4.11.	Feldabhängigkeit des Magnetowiderstandskoeffizienten $R_2(B)/R_2(B = 0)$ von MnSi-Bulk und Dünnsfilm	82

5.1.	Kristallstruktur von UPt_2Si_2	89
5.2.	Vergleichende Auftragung des Hall-Widerstandes und des transversalen Magnetowiderstandes von UPt_2Si_2	93
5.3.	Hall-Widerstand ρ_{xy} von UPt_2Si_2 bei verschiedenen Temperaturen für $B \parallel c$ -Achse	94
5.4.	Transversaler Magnetowiderstand von UPt_2Si_2 bei verschiedenen Temperaturen für $B \parallel c$ -Achse	95
5.5.	Longitudinaler Magnetowiderstand von UPt_2Si_2 bei verschiedenen Temperaturen für $B \parallel c$ -Achse	97
5.6.	Axiale Magnetostriktion von UPt_2Si_2 für Magnetfelder $B \parallel a$ und c -Achse	98
5.7.	Axiale Magnetostriktion von UPt_2Si_2 für Magnetfelder $B \parallel c$ -Achse bei 1.8 K und Illustration der strukturellen Hysterese	99
5.8.	Magnetisches Phasendiagramm von UPt_2Si_2 für Magnetfelder $B \parallel a$ und c -Achse	100
5.9.	Berechnete Fermi-Oberflächen von UPt_2Si_2 in der paramagnetischen Phase.	106
5.10.	Lifshitz-Übergang illustriert durch Isoenergieflächen $E = E_F - 6 \text{ meV}$, $E = E_F$, $E = E_F + 6 \text{ meV}$	107
5.11.	Isoenergieflächen $E = E_F - 6 \text{ meV}$ und $E = E_F + 6 \text{ meV}$, wenn $5f$ -Elektronen mit dem Leitungsband hybridisieren	108
6.1.	Kristallstruktur von $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$ in quasiorthorhombischen Koordinaten.	111
6.2.	Magnetische Struktur von $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$ in quasiorthorhombischen Koordinaten.	112
6.3.	Magnetisierung von $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$ in gepulsten Magnetfeldern entlang der drei Kristallachsen bis 30 T.	114
6.4.	Das magnetische Phasendiagramm für $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$ auf Basis von Messungen in Feldern bis 30 T.	115
6.5.	Spezifischer Widerstand für die drei Kristallachsen aus Ref. [134]	116
6.6.	Spezifische Wärmekapazität von $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$ in Abhängigkeit der Temperatur aus Ref. [134]	117
6.7.	Spezifischer Widerstand von $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$ für $I \parallel a$ -Achse bis 100 K.	119

6.8. Spezifischer Widerstand von $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$ für $I \parallel b$ -Achse bis 100 K.	120
6.9. Spezifischer Widerstand von $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$ für $I \parallel c$ -Achse bis 100 K.	121
6.10. Vergleich zwischen zwei Messzyklen bei der Messung des Widerstandes für $I \parallel b$	122
6.11. Normierter longitudinaler Magnetowiderstand von $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$ für $B \parallel I \parallel a$ von 2 K bis 30 K bis 9 T	124
6.12. Normierter longitudinaler Magnetowiderstand von $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$ für $B \parallel I \parallel b$ von 2 K bis 27 K bis 9 T	125
6.13. Normierter longitudinaler Magnetowiderstand von $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$ für $B \parallel I \parallel c$ von 2 K bis 30 K bis 9 T	126
6.14. Magnetisierung von $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$ entlang der kristallografischen a -Achse für unterschiedliche Temperaturen in gepulsten Magnetfeldern bis 65 T	127
6.15. Magnetisierung von $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$ entlang der kristallografischen b -Achse für unterschiedliche Temperaturen in gepulsten Magnetfeldern bis 20 T	128
6.16. Magnetisierung von $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$ entlang der kristallografischen c -Achse für unterschiedliche Temperaturen in gepulsten Magnetfeldern bis 65 T	129
6.17. Magnetisierung von $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$ und Bestimmung der Phasengrenzen durch die Maxima von $\partial M / \partial B$	131
6.18. Magnetostriktion von $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$ für unterschiedliche Temperaturen in gepulsten Magnetfeldern bis 50 T mit $B \parallel a$	132
6.19. Magnetostriktion von $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$ für unterschiedliche Temperaturen in gepulsten Magnetfeldern bis 60 T mit $B \parallel b$	134
6.20. Magnetostriktion von $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$ entlang der kristallographischen a -Achse bei 4 K und Bestimmung der Phasengrenzen durch grafische Extrapolation der relevanten Bereiche.	135
6.21. Magnetostriktion von $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$ entlang der kristallographischen b -Achse und Bestimmung der Phasengrenzen durch grafische Extrapolation der relevanten Bereiche.	136
6.22. Phasendiagramm von $\text{U}_2\text{Rh}_3\text{Si}_5$ aus der Magnetisierung, dem Magnetowiderstand und der Magnetostriktion für die drei Kristallachsen.	137

A.1. LR700 Widerstandsmessbrücke	143
A.2. Mit der LR700 gemessener temperaturabhängiger Widerstand eines Indiumdrahtes und unterschiedlicher Polung der Spannungskontakte in AC-Vier-Punkt-Konfiguration.	145
A.3. Mit der LR700 gemessener temperaturabhängiger Widerstand eines Indiumdrahtes und unterschiedlich eingestellten Filterzeiten und Probenströmen.	148
A.4. Mit der LR700 gemessener temperaturabhängiger Widerstand eines Indiumdrahtes bei verschiedenen Temperaturänderungsraten.	150
A.5. Technische Zeichnung des verwendeten Kryostaten	151
B.1. Magnetisches Phasendiagramm für unterschiedliche stöchiometrische Zusammensetzung von $\text{Nb}_{1-y}\text{Fe}_{2+y}$	153
B.2. Magnetische Feldabhängigkeit des spezifischen Widerstandes von NbFe_2	155
B.3. 3D/Konturplot von $\Delta\rho/\rho$ als Funktion des Magnetfeldes von NbFe_2	156

Literaturverzeichnis

- [1] T. Sakakibara, H. Molymoto und M. Date, J. Phys. Soc. Jpn. **51**, 2439 (1982).
- [2] P. Allen, *Conceptual Foundations of Materials - A Standard Model for Ground- and Excited-State Properties* (Elsevier, 2006).
- [3] P. Drude, Annalen der Physik **306**, 566 (1900).
- [4] A. Sommerfeld, Die Naturwissenschaften **16**, 374 (1928).
- [5] A. Sommerfeld und H. Bethe, *Aufbau Der Zusammenhängenden Materie* (Springer Berlin Heidelberg, 1933).
- [6] F. Bloch, Zeitschrift für Physik **52**, 555 (1929).
- [7] L. D. Landau, *Collected Papers of L.D. Landau* (Elsevier, 1965).
- [8] N. W. Ashcroft und D. N. Mermin, *Festkörperphysik* (De Gruyter Oldenbourg, 2012).
- [9] P. L. Rossiter, *The electrical resistivity of metals and alloys* (Cambridge University Press, 1987).
- [10] N. F. Mott und H. Jones, *The Theory of the Properties of Metals and Alloys* (Dover Publications, 1958).
- [11] H. Ibach und H. Lüth, *Festkörperphysik: Einführung in die Grundlagen* (Springer, 2008).

- [12] T. Moriya, *Spin Fluctuations in Itinerant Electron Magnetism* ((Solid-State Sciences) Springer, Berlin, 1985).
 - [13] B. Coles, *Advances in Physics* **7**, 40 (1958).
 - [14] A. I. Schindler und M. J. Rice, *Phys. Rev.* **164**, 759 (1967).
 - [15] J. Mathon, *Proc. R. Soc. A* **306**, 355 (1968).
 - [16] K. Ueda, *Solid State Communications* **19**, 965 (1976).
 - [17] S. Ogawa, *J. Phys. Soc. Jpn.* **40**, 1007 (1976).
 - [18] T. Hioki und Y. Masuda, *J. Phys. Soc. Jpn.* **43**, 1200 (1977).
 - [19] W. Meissner und B. Voigt, *Ann. Phys.* **399**, 892 (1930).
 - [20] J. Kondo, *Prog. Theo. Phys.* **32**, 37 (1964).
 - [21] K. G. Wilson, *Reviews of Modern Physics* **47**, 773 (1975).
 - [22] W. Pearson, *Phil. Mag.* **46**, 911 (1955).
 - [23] O. Madelung, U. Rössler und M. Schulz, *Group IV Elements, IV-IV and III-V Compounds. Part b - Electronic, Transport, Optical and Other Properties* (Springer-Verlag, 2002).
 - [24] I. Miccoli, F. Edler, H. Pfnür und C. Tegenkamp, *J. Phys. Condens. Matter* **27**, 223201 (2015).
 - [25] F. Wenner, *Journal of the Washington Academy of Sciences* **15**, 561 (1915).
 - [26] D. H. Petersen, O. Hansen, R. Lin und P. F. Nielsen, *J. Appl. Phys.* **104**, 013710 (2008).
 - [27] N. Steinki, J. Winter, D. S. Grachtrup, D. Menzel, S. Süllo,
-

- A. Knappschneider und B. Albert, *J. Alloys Compd.* **695**, 2149 (2017).
- [28] M. I. Eremets, *High Pressure Experimental Methods* (Oxford University Press, Oxford, 1999).
- [29] D. Schroeter, N. Steinki, M. Schilling, A. F. Scarioni, P. Krzysteczko, T. Dziomba, H. W. Schumacher, D. Menzel und S. Süllo, *J. Phys. Condens. Matter* **30**, 235805 (2018).
- [30] K. C. Buschveck und K. Niedenzu, *Boron Compounds, Elemental Boron and Boron Carbides 13, Gmelin Handbook of Inorganic and Organometallic Chemistry* (Springer-Verlag, 1981).
- [31] B. Albert und H. Hillebrecht, *Angew. Chem. Int. Ed.* **48**, 8640 (2009).
- [32] H. Gou, N. Dubrovinskaia, E. Bykova, A. A. Tsirlin, D. Kasinathan, W. Schnelle, A. Richter, M. Merlini, M. Hanfland, A. M. Abakumov, D. Batuk, G. Van Tendeloo, Y. Nakajima, A. N. Kolmogorov und L. Dubrovinsky, *Phys. Rev. Lett.* **111**, 157002 (2013).
- [33] J. Nagamatsu, N. Nakagawa, T. Muranaka, Y. Zenitani und J. Akimitsu, *Nature* **410**, 63 (2001).
- [34] S. Süllo, I. Prasad, M. C. Aronson, J. L. Sarrao, Z. Fisk, D. Hristova, A. H. Lacerda, M. F. Hundley, A. Vigliante und D. Gibbs, *Phys. Rev. B* **57**, 5860 (1998).
- [35] K. N. Lee und B. Bell, *Phys. Rev. B* **6**, 1032 (1972).
- [36] X. Zhang, N. P. Butch, P. Syers, S. Ziemak, R. Greene und J. Paglione, *Phys. Rev. X* **3**, 011011 (2013).
- [37] R. Fruchart und A. Michel, *Compt. Rend.* **251**, 2953 (1960).
-

-
- [38] B. Wang, X. Li, Y. X. Wang und Y. F. Tu, *J. Phys. Chem. C* **115**, 21429 (2011).
- [39] H. Gou, Z. Li, H. Niu, F. Gao, J. Zhang, R. C. Ewing und J. Lian, *Appl. Phys. Lett.* **100**, 111907 (2012).
- [40] C. Litterscheid, A. Knappschneider und B. Albert, *Z. Anorg. Allg. Chem.* **638**, 1608 (2012).
- [41] M. Yang, Y. Wang, J. Yao, Z. Li, J. Zhang, L. Wu, H. Li, J. Zhang und H. Gou, *J. Solid State Chem.* **213**, 52 (2014).
- [42] A. Knappschneider, C. Litterscheid, N. C. George, J. Brgoch, N. Wagner, J. Beck, J. A. Kurzman, R. Seshadri und B. Albert, *Angew. Chem. Int. Ed.* **53**, 1684 (2014).
- [43] H. Gou, A. A. Tsirlin, E. Bykova, A. M. Abakumov, G. V. Tendeloo, A. Richter, S. V. Ovsyannikov, A. V. Kurnosov, D. M. Trots, Z. Konôpková, H.-P. Liermann, L. Dubrovinsky und N. Dubrovinskaia, *Phys. Rev. B* **89**, 064108 (2014).
- [44] H. Niu, X.-Q. Chen, W. Ren, Q. Zhu, A. R. Oganov, D. Li und Y. Li, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **16**, 15866 (2014).
- [45] A. G. Van Der Geest und A. N. Kolmogorov, *Calphad* **46**, 184 (2014).
- [46] Y. Liang, X. Yuan, Y. Gao, W. Zhang und P. Zhang, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 176401 (2014).
- [47] A. Knappschneider, C. Litterscheid, J. Brgoch, N. C. George, S. Henke, A. K. Cheetham, J. G. Hu, R. Seshadri und B. Albert, *Chem. Eur. J.* **21**, 8177 (2015).
- [48] Y. Liang, Z. Wu und S. Wang, *AIP Advances* **5**, 117208 (2015).
- [49] S. Andersson, *Acta Chemica Scandinavica* **23**, 687 (1969).
-

-
- [50] S. Andersson und J. O. Carlsson, *Acta Chemica Scandinavica* **24**, 1791 (1970).
- [51] D. Orobengoa, C. Capillas, M. I. Aroyo und J. M. Perez-Mato, *J. Appl. Cryst.* **42**, 820 (2009).
- [52] J. M. Perez-Mato, D. Orobengoa und M. I. Aroyo, *Acta Crystallographica Section A* **66**, 558 (2010).
- [53] Y. Nishino, M. Kato, S. Asano, K. Soda, M. Hayasaki und U. Mizutani, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 1909 (1997).
- [54] A. Matsushita und Y. Yamada, *J. Magn. Magn. Mater.* **196-197**, 669 (1999).
- [55] I. Maksimov, D. Baabe, H. H. Klauss, F. J. Litterst, R. Feyerherm, D. M. Többens, A. Matsushita und S. Süllow, *J. Phys. Condens. Matter* **13**, 5487 (2001).
- [56] B. Amsler, Z. Fisk, J. L. Sarrao, S. von Molnar, M. W. Meisel und F. Sharifi, *Phys. Rev. B* **57**, 8747 (1998).
- [57] M. C. Aronson, J. L. Sarrao, Z. Fisk, M. Whittton und B. L. Brandt, *Phys. Rev. B* **59**, 4720 (1999).
- [58] H. J. Williams, J. H. Wernick, R. C. Sherwood und G. K. Wertheim, *J. Appl. Phys.* **37**, 1256 (1966).
- [59] D. Shinoda und S. Asanabe, *J. Phys. Soc. Jpn.* **21**, 555 (1966).
- [60] C. Pfleiderer, T. Adams, A. Bauer, W. Biberacher, B. Binz, F. Birkelbach, P. Böni, C. Franz, R. Georgii, M. Janoschek, F. Jonietz, T. Keller, R. Ritz, S. Mühlbauer, W. Münzer, A. Neubauer, B. Pedersen und A. Rosch, *J. Phys. Condens. Matter* **22**, 164207 (2010).
- [61] J. Thompson, Z. Fisk und G. Lonzarich, *Physica B: Condensed Matter* **161**, 317 (1989).
-

- [62] S. Mühlbauer, B. Binz, F. Jonietz, C. Pfleiderer, A. Rosch, A. Neubauer, R. Georgii und P. Böni, *Science* **323**, 915 (2009).
 - [63] E. Karhu, S. Kahwaji, T. L. Monchesky, C. Parsons, M. D. Robertson und C. Maunders, *Phys. Rev. B* **82**, 184417 (2010).
 - [64] E. A. Karhu, S. Kahwaji, M. D. Robertson, H. Fritzsche, B. J. Kirby, C. F. Majkrzak und T. L. Monchesky, *Phys. Rev. B* **84**, 060404 (2011).
 - [65] E. A. Karhu, U. K. Rößler, A. N. Bogdanov, S. Kahwaji, B. J. Kirby, H. Fritzsche, M. D. Robertson, C. F. Majkrzak und T. L. Monchesky, *Phys. Rev. B* **85**, 094429 (2012).
 - [66] B. Geisler, P. Kratzer, T. Suzuki, T. Lutz, G. Costantini und K. Kern, *Phys. Rev. B* **86**, 115428 (2012).
 - [67] M. N. Wilson, E. A. Karhu, A. S. Quigley, U. K. Rößler, A. B. Butenko, A. N. Bogdanov, M. D. Robertson und T. L. Monchesky, *Phys. Rev. B* **86**, 144420 (2012).
 - [68] J. Engelke, T. Reimann, L. Hoffmann, S. Gass, D. Menzel und S. Süllo, *J. Phys. Soc. Jpn.* **81**, 124709 (2012).
 - [69] Y. Li, N. Kanazawa, X. Z. Yu, A. Tsukazaki, M. Kawasaki, M. Ichikawa, X. F. Jin, F. Kagawa und Y. Tokura, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 117202 (2013).
 - [70] T. Suzuki, T. Lutz, B. Geisler, P. Kratzer, K. Kern und G. Costantini, *Surface Science* **617**, 106 (2013).
 - [71] D. Menzel, J. Engelke, T. Reimann und S. Süllo, *J. Kor. Phys. Soc.* **62**, 1580 (2013).
 - [72] M. N. Wilson, E. A. Karhu, D. P. Lake, A. S. Quigley, S. Meynell, A. N. Bogdanov, H. Fritzsche, U. K. Rößler und T. L. Monchesky, *Phys. Rev. B* **88**, 214420 (2013).
-

-
- [73] T. Yokouchi, N. Kanazawa, A. Tsukazaki, Y. Kozuka, M. Kawasaki, M. Ichikawa, F. Kagawa und Y. Tokura, *Phys. Rev. B* **89**, 064416 (2014).
- [74] M. N. Wilson, A. B. Butenko, A. N. Bogdanov und T. L. Monchesky, *Phys. Rev. B* **89**, 094411 (2014).
- [75] J. Engelke, D. Menzel, H. Hidaka, T. Seguchi und H. Amitsuka, *Phys. Rev. B* **89**, 144413 (2014).
- [76] S. A. Meynell, M. N. Wilson, H. Fritzsche, A. N. Bogdanov und T. L. Monchesky, *Phys. Rev. B* **90**, 014406 (2014).
- [77] S. A. Meynell, M. N. Wilson, J. C. Loudon, A. Spitzig, F. N. Rybakov, M. B. Johnson und T. L. Monchesky, *Phys. Rev. B* **90**, 224419 (2014).
- [78] T. Yokouchi, N. Kanazawa, A. Tsukazaki, Y. Kozuka, A. Kikkawa, Y. Taguchi, M. Kawasaki, M. Ichikawa, F. Kagawa und Y. Tokura, *J. Phys. Soc. Jpn.* **84**, 104708 (2015).
- [79] T. Lancaster, F. Xiao, Z. Salman, I. O. Thomas, S. J. Blundell, F. L. Pratt, S. J. Clark, T. Prokscha, A. Suter, S. L. Zhang, A. A. Baker und T. Hesjedal, *Phys. Rev. B* **93**, 140412 (2016).
- [80] A. I. Figueroa, S. L. Zhang, A. A. Baker, R. Chalasani, A. Kohn, S. C. Speller, D. Gianolio, C. Pfleiderer, G. van der Laan und T. Hesjedal, *Phys. Rev. B* **94**, 174107 (2016).
- [81] S. A. Meynell, A. Spitzig, B. Edwards, M. D. Robertson, D. Kalliecharan, L. Kreplak und T. L. Monchesky, *Phys. Rev. B* **94**, 184416 (2016).
- [82] S. A. Meynell, M. N. Wilson, K. L. Krycka, B. J. Kirby, H. Fritzsche und T. L. Monchesky, *Phys. Rev. B* **96**, 054402 (2017).
- [83] M. Trabel, N. V. Tarakina, C. Pohl, J. A. Constantino, C. Gould,
-

- K. Brunner und L. W. Molenkamp, J. Appl. Phys. **121**, 245310 (2017).
- [84] C. Pfleiderer, G. J. McMullan, S. R. Julian und G. G. Lonzarich, Phys. Rev. B **55**, 8330 (1997).
- [85] A. E. Petrova, E. D. Bauer, V. Krasnorussky und S. M. Stishov, Phys. Rev. B **74**, 092401 (2006).
- [86] K. Kadowaki, K. Okuda und M. Date, J. Phys. Soc. Jpn. **51**, 2433 (1982).
- [87] D. Rauch, N. Steinki, W. Knafo, C. Pfleiderer, W. Duncan, F. Grosche und S. Süllo, Physica B **536**, 510 (2018).
- [88] N. Kozlova, J. Hagel, M. Doerr, J. Wosnitza, D. Eckert, K.-H. Müller, L. Schultz, I. Opahle, S. Elgazzar, M. Richter, G. Goll, H. v. Löhneysen, G. Zwicknagl, T. Yoshino und T. Takabatake, Phys. Rev. Lett. **95**, 086403 (2005).
- [89] P. M. C. Rourke, A. McCollam, G. Lapertot, G. Knebel, J. Flouquet und S. R. Julian, Phys. Rev. Lett. **101**, 237205 (2008).
- [90] T. Plackowski, D. Kaczorowski und J. Sznajd, Phys. Rev. B **83**, 174443 (2011).
- [91] E. A. Yelland, J. M. Barraclough, W. Wang, K. V. Kamenev und A. D. Huxley, Nat. Phys. **7**, 890 (2011).
- [92] M. Deppe, S. Lausberg, F. Weickert, M. Brando, Y. Skourski, N. Caroca-Canales, C. Geibel und F. Steglich, Phys. Rev. B **85**, 060401 (2012).
- [93] H. Pfau, R. Daou, S. Lausberg, H. R. Naren, M. Brando, S. Friedemann, S. Wirth, T. Westerkamp, U. Stockert, P. Gegenwart, C. Krellner, C. Geibel, G. Zwicknagl und F. Steglich, Phys. Rev. Lett. **110**, 256403 (2013).
-

-
- [94] A. Pourret, G. Knebel, T. D. Matsuda, G. Lapertot und J. Flouquet, *J. Phys. Soc. Jpn.* **82**, 053704 (2013).
 - [95] H. R. Naren, S. Friedemann, G. Zwicknagl, C. Krellner, C. Geibel, F. Steglich und S. Wirth, *New J. Phys.* **15**, 093032 (2013).
 - [96] D. Aoki, G. Knebel und J. Flouquet, *J. Phys. Soc. Jpn.* **83**, 094719 (2014).
 - [97] D. Aoki, G. Seyfarth, A. Pourret, A. Gourgout, A. McCollam, J. A. N. Bruin, Y. Krupko und I. Sheikin, *Phys. Rev. Lett.* **116**, 037202 (2016).
 - [98] G. Bastien, A. Gourgout, D. Aoki, A. Pourret, I. Sheikin, G. Seyfarth, J. Flouquet und G. Knebel, *Phys. Rev. Lett.* **117**, 206401 (2016).
 - [99] I. M. Lifshitz, *Sov. Phys. JETP* **11**, 1130 (1960).
 - [100] A. Varlamov, V. Egorov und A. Pantsulaya, *Adv. Phys.* **38**, 469 (1989).
 - [101] Y. Yamaji, T. Misawa und M. Imada, *J. Phys. Soc. Jpn.* **75**, 094719 (2006).
 - [102] Y. Yamaji, T. Misawa und M. Imada, *J. Magn. Magn. Mater.* **310**, 838 (2007).
 - [103] P. Schlottmann, *J. Appl. Phys.* **111**, 07E101 (2012).
 - [104] M. Bercx und F. F. Assaad, *Phys. Rev. B* **86**, 075108 (2012).
 - [105] Y. Wang, M. N. Gastiasoro, B. M. Andersen, M. Tomić, H. O. Jeschke, R. Valentí, I. Paul und P. J. Hirschfeld, *Phys. Rev. Lett.* **114**, 097003 (2015).
-

- [106] S. G. Sharapov, V. P. Gusynin und H. Beck, *Phys. Rev. B* **67**, 144509 (2003).
 - [107] K. Hiebl und P. Rogl, *J. Nucl. Mater.* **144**, 193 (1987).
 - [108] R. A. Steeman, E. Frikkee, S. A. M. Mentink, A. A. Menovsky, G. J. Nieuwenhuys und J. A. Mydosh, *J. Phys. Condens. Matter* **2**, 4059 (1990).
 - [109] S. Süllo, A. Otop, A. Loose, J. Klenke, O. Prokhnenko, R. Feyherm, R. W. A. Hendrikx, J. A. Mydosh und H. Amitsuka, *J. Phys. Soc. Jpn.* **77**, 024708 (2008).
 - [110] G. J. Nieuwenhuys, *Phys. Rev. B* **35**, 5260 (1987).
 - [111] H. Amitsuka, T. Sakakibara, K. Sugiyama, T. Ikeda, Y. Miyako, M. Date und A. Yamagishi, *Phys. B (Amsterdam, Neth.)* **177**, 173 (1992).
 - [112] D. S. Grachtrup, M. Bleckmann, B. Willenberg, S. Süllo, M. Bartkowiak, Y. Skourski, H. Rakoto, I. Sheikin und J. A. Mydosh, *Phys. Rev. B* **85**, 054410 (2012).
 - [113] D. S. Grachtrup, M. Bleckmann, S. Süllo, B. Willenberg, H. Rakoto, Y. Skourski und J. A. Mydosh, *J. Low Temp. Phys.* **159**, 147 (2010).
 - [114] S. Elgazzar, J. Rusz, P. M. Oppeneer und J. A. Mydosh, *Phys. Rev. B* **86**, 075104 (2012).
 - [115] G. Zwicknagl, *Rep. Prog. Phys.* **79**, 124501 (2016).
 - [116] G. Zwicknagl, A. N. Yaresko und P. Fulde, *Phys. Rev. B* **65**, 081103 (2002).
 - [117] G. Zwicknagl, A. Yaresko und P. Fulde, *Phys. Rev. B* **68**, 052508 (2003).
-

-
- [118] M. Bleckmann, A. Otop, S. Süllo, R. Feyerherm, J. Klenke, A. Loose, R. Hendrikx, J. Mydosh und H. Amitsuka, J. Magn. Mater. **322**, 2447 (2010).
- [119] R. Daou, F. Weickert, M. Nicklas, F. Steglich, A. Haase und M. Doerr, Rev. Sci. Instrum. **81**, 033909 (2010).
- [120] M. Jaime, R. Daou, S. A. Crooker, F. Weickert, A. Uchida, A. E. Feiguin, C. D. Batista, H. A. Dabkowska und B. D. Gaulin, Proc. Natl. Acad. Sci. **109**, 12404 (2012).
- [121] Y. S. Oh, K. H. Kim, P. A. Sharma, N. Harrison, H. Amitsuka und J. A. Mydosh, Phys. Rev. Lett. **98**, 016401 (2007).
- [122] Z. Çakir, Elektronische Eigenschaften von $5f$ -Systemen: Die Schwer-Fermionen-Verbindung UPt_2Si_2 , Diplomarbeit, TU-Braunschweig, 2012.
- [123] D. S. Grachtrup, N. Steinki, S. Süllo, Z. Çakir, G. Zwicknagl, Y. Krupko, I. Sheikin, M. Jaime und J. A. Mydosh, Phys. Rev. B **95**, 134422 (2017).
- [124] O. K. Andersen, Phys. Rev. B **12**, 3060 (1975).
- [125] H. L. Skriver, *The LMTO Method, Springer Series in Solid State Sciences Vol. 41* (Springer, Berlin, 1984).
- [126] N. E. Christensen, Int. J. Quantum Chem. **25**, 233 (1984).
- [127] R. C. Albers, A. M. Boring und N. E. Christensen, Phys. Rev. B **33**, 8116 (1986).
- [128] U. von Barth und L. Hedin, J. Phys. C: Solid State Phys. **5**, 1629 (1972).
- [129] O. Jepson und O. Anderson, Solid State Commun. **9**, 1763 (1971).
-

- [130] G. Lehmann und M. Taut, *Physica Status Solidi B* **54**, 469 (1972).
 - [131] J. A. Mydosh und P. M. Oppeneer, *Rev. Mod. Phys.* **83**, 1301 (2011).
 - [132] G. W. Scheerer, W. Knafo, D. Aoki, G. Ballon, A. Mari, D. Vignolles und J. Flouquet, *Phys. Rev. B* **85**, 094402 (2012).
 - [133] T. Takeuchi, T. Yamada, Y. Miyako, K. Oda, K. Kindo, B. Becker, S. Ramakrishnan, A. A. Menovsky, G. J. Nieuwenhuys und J. A. Mydosh, *Phys. Rev. B* **56**, 10778 (1997).
 - [134] B. Becker, S. Ramakrishnan, A. A. Menovsky, G. J. Nieuwenhuys und J. A. Mydosh, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 1347 (1997).
 - [135] E. Hickey, B. Chevalier, P. Gravereau und J. Etourneau, *J. Magn. Magn. Mater.* **90-91**, 501 (1990).
 - [136] R. Feyerherm, C. R. Wiebe, B. D. Gaulin, M. F. Collins, B. Becker, R. W. A. Hendrikx, T. J. Gortenmulder, G. J. Nieuwenhuys und J. A. Mydosh, *Phys. Rev. B* **56**, 13693 (1997).
 - [137] R. G. Leisure, S. Kern, F. R. Drymiotis, H. Ledbetter, A. Migliori und J. A. Mydosh, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 075506 (2005).
 - [138] Y.-L. Wang und B. R. Cooper, *Phys. Rev.* **172**, 539 (1968).
 - [139] S. Friedemann, M. Brando, W. J. Duncan, A. Neubauer, C. Pfleiderer und F. M. Grosche, *Phys. Rev. B* **87**, 024410 (2013).
 - [140] W. Duncan, *Quantum phase transitions in NbFe₂ and BaF₂2As₂*, Doktorarbeit, Royal Holloway, University of London, 2010.
 - [141] A. Neubauer, *Single crystal growth of intermetallic compounds with unusual low temperature properties*, Doktorarbeit, Fakultät für Physik E21, TU München, 2011.
-

-
- [142] A. Neubauer, J. Boeuf, A. Bauer, B. Russ, H. v. Löhneysen und C. Pfeiderer, *Rev. Sci. Instrum.* **82**, 013902 (2011).
- [143] P. Gegenwart, Q. Si und F. Steglich, *Nat. Phys.* **4**, 186 (2008).
- [144] P. Gegenwart, T. Westerkamp, C. Krellner, Y. Tokiwa, S. Paschen, C. Geibel, F. Steglich, E. Abrahams und Q. Si, *Science* **315**, 969 (2007).
- [145] M. Brando, L. Pedrero, T. Westerkamp, C. Krellner, P. Gegenwart, C. Geibel und F. Steglich, *Phys. Stat. Sol. B* **250**, 485 (2013).
- [146] W. Knafo, R. Settai, D. Braithwaite, S. Kurahashi, D. Aoki und J. Flouquet, *Phys. Rev. B* **95**, 014411 (2017).
- [147] W. Knafo, D. Aoki, D. Vignolles, B. Vignolle, Y. Klein, C. Jaudet, A. Villaume, C. Proust und J. Flouquet, *Phys. Rev. B* **81**, 094403 (2010).
- [148] W. Knafo, T. D. Matsuda, D. Aoki, F. Hardy, G. W. Scheerer, G. Ballon, M. Nardone, A. Zitouni, C. Meingast und J. Flouquet, *Phys. Rev. B* **86**, 184416 (2012).
- [149] M. Brando, W. J. Duncan, D. Moroni-Klementowicz, C. Albrecht, D. Grüner, R. Ballou und F. M. Grosche, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 02640 (2008).
- [150] D. Rauch, M. Kraken, F. J. Litterst, S. Süllo, H. Luetkens, M. Brando, T. Förster, J. Sichelschmidt, A. Neubauer, C. Pfeiderer, W. J. Duncan und F. M. Grosche, *Phys. Rev. B* **91**, 174404 (2015).
- [151] M. E. Fisher und J. S. Langer, *Phys. Rev. Lett.* **20**, 665 (1968).
-

Lebenslauf

Persönliche Daten

Name	Nico Steinki
Geburtsort	Helmstedt
Geburtstag	19.12.1988
Nationalität	deutsch

Schulische Ausbildung

1995 - 1999	Grundschule Hasenwinkel Neindorf
1999 - 2008	Heinrich-Nordhoff-Gesamtschule Wolfsburg dort 2008 Abitur

Zivildienst

2008 - 2009	Rettungsdienst Landkreis Helmstedt
-------------	------------------------------------

Universitäre Ausbildung

10/2009 - 9/2012	Studium an der Technischen Universität Braunschweig Bachelor of Science Physik 2012 Abschlussarbeit: <i>Entwicklung eines Probenhalters zur Bestimmung des Halleffektes in korrelierten Elektronensystemen</i>
10/2012 - 10/2014	Studium an der Technischen Universität Braunschweig Master of Science Physik 2014 Abschlussarbeit: <i>Widerstand und Hall-Magnetometrie an mikroskaligen Proben</i>

Derzeitige Anstellung

Seit 11/2014	Wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Physik der Kondensierten Materie, Technische Universität Braunschweig Betreuer: Professor Dr. Stefan Süllo, TU Braunschweig
--------------	---

Weitere Veröffentlichungen

- D. Schroeter, N. Steinki, M. Schilling, A. Fernández Scaroni, P. Kryzsteczko, T. Dziomba, H. W. Schumacher, D. Menzel, S. Süllo: *MnSi-nanostructures obtained from thin films: magnetotransport and Hall effect*, J. Phys.: Cond. Matt. **30** (2018) 235805
- D. Schroeter, N. Steinki, A. Fernández Scaroni, H. W. Schumacher, S. Süllo, D. Menzel: *Electronic transport properties of nanostructured MnSi-films*, Physica B **536** (2018) 317-319
- D. Menzel, D. Schroeter, N. Steinki, S. Süllo, A. Fernández Scaroni, H. W. Schumacher, H. Okuyama, H. Hidaka, H. Amitsuka: *Hall effect and resistivity in epitaxial MnSi thin films under ambient and high pressure*, IEEE Transactions on Magnetics **55** (2019) 1500204
- D. Menzel, N. Steinki, D. Baabe, F. J. Litterst, K. Dietze, M. Sach, B. Rubrecht, S. Süllo, A. Hoser: *Local structure determination in helimagnetic $\text{Co}_8\text{Zn}_8\text{Mn}_{4-x}\text{Fe}_x$* , J. Phys. Commun. **3** (2019) 025001

Braunschweig, 18.02.2019

Danksagung

Ein großes „Danke!“ möchte ich all denen sagen, die mich auf meinem Weg in der Universität begleitet haben. Durch euch und eure Unterstützung konnte die hier vorliegende Arbeit überhaupt erst entstehen.

Zuallererst wäre da Ilya Sheikin, Kontaktperson und lokaler Betreuer in Grenoble, der den Hochfeldmessungen stets mit Rat und Expertise zur Seite stand. Ich hoffe der 24 T Magnet ist wieder heile. Frau Professor Zwicknagl und Zübeyir Çakir möchte ich für die Bereitstellung der theoretischen Untersuchungen an UPt_2Si_2 danken, die das Kapitel in dieser Arbeit und die gemeinsame Veröffentlichung zu UPt_2Si_2 abrunden.

Dirk Menzel danke ich für die Vermessung meiner Proben im SQUID-Magnetometer. Im Kontext MnB_4 möchte ich Arno Knappschneider und Babara Albert für die Bereitstellung der Kristalle danken und natürlich Lennart Winter, denn im Rahmen seiner Bachelorarbeit konnten wir erst das finale Setup für die Vermessung der Proben entwickeln. Darüber hinaus hat mir seine Betreuung durchaus Freude bereitet. Auch wenn sich erst nach einiger Zeit „ein Gleichgewicht“ eingestellt hat, bin ich froh, dass er es lebend aus dem Labor geschafft hat.

Wenn wir schon bei Laborsetups sind, möchte ich natürlich ganz besonders den technischen Mitarbeitern des IPKM danken. Arno Ellermann und Andreas Dudler haben mir so manches Mal ein verloren geglaubtes Teil repariert und durch die Operationen am offenen Kryo mit Arno, kann ich mir mittlerweile eine gewisse Kryo-Expertise nicht mehr abstreiten lassen. Ebenfalls sei hier Lutz „Naggi“ Nagatz erwähnt, der in Sachen Strom und Spannung immer der richtige Ansprechpartner war (egal wie hoch oder niedrig). In diesem Kontext darf natürlich auch mein Lieblingsprobenpräparator Thilo Lampe nicht fehlen. Ich vermisse jetzt schon unsere philosophischen Gespräche während des Probenätzens. Darüber hinaus möchte ich natürlich Manuela Bosse, Gudrun Zeising und allen Ausgebildeten und Auszubildenden des IPKM danken.

Eine besondere Erwähnung und ein großes Dankeschön verdient an dieser Stelle Dirk Schulze Grachtrup (DSG), mein Vorgänger. Ich kann mit Fug und Recht behaupten, dass unsere gemeinsamen experimentellen Errungenschaften mich nachhaltig geprägt haben und ich denke gerne an jedes einzelne Projekt zurück (Mach 0.666). Dazu passt das wirklich schöne und harmonische Bü-

roleben mit Leonie Heinze und David Schroeter. Leonie hat mir auch schon während der Betreuung ihrer Bachelorarbeit einige Hinweise geben können, durch die ich komplizierte theoretische Grundlagen der Festkörperphysik besser oder neu verstehen konnte. Mit David habe ich einen ganz besonderen Leidensgenossen gefunden. Da wir als Doktoranden zusammen angefangen haben und die turbulenten Jahre gemeinsam durchleben konnten, waren die schweren Momente weitaus erträglicher (Schade, dass wir bis jetzt die Tafel nicht besiegen konnten, aber vielleicht ist das auch besser so).

An dieser Stelle passt auch ein nettes Dankeschön an die Doktoranden vom IAP. Unsere interinstitutionellen Meetings haben mir den Unialltag versüßt. Ein besonderes Dankeschön gilt natürlich Philipp Horenburg, mit dem ich während und nach dem Physik-Studium eine echt geile Zeit hatte, wie die deutsche Rockband Silbermond oder Juli zu singen pflegt, und natürlich „Danke“ für dein Korrekturlesen.

Im Rahmen der Universität gilt mein letztes Dankeschön meinem Doktorvater Stefan Süllo. Ohne ihn würde ich diese Worte hier definitiv nicht schreiben und ich hoffe, dass wir auch nach meiner Zeit an der Universität Gelegenheiten finden, bei denen wir weiter den Problemen der Wissenschaft und Gesellschaft auf den Grund gehen können. Er hat mir die Tür zu dem äußerst „coolen“ und interessanten Thema der korrelierten Elektronensysteme geöffnet und an seiner Art der Betreuung sollten sich einige Dozenten und Dozentinnen ein Beispiel nehmen.

Und zu guter Letzt möchte ich natürlich meinen Eltern, meinem Bruder Florian und meiner Freundin Yuxuan danken. Sie waren stets für mich da und sie konnten mich immer aufbauen, wenn es mal nicht so gut lief. Auf sie war und ist immer Verlass!